



انجمن حفاظت در برابر اشعه ایران

مقاله کنفرانسی



مجله سنجش و ایمنی پرتو، جلد ۱۱، شماره ۴، زمستان (ویژه نامه) ۱۴۰۱، صفحه ۱۴۳-۱۵۱

ششمین کنفرانس سنجش و ایمنی پرتوهای یون ساز و غیر یون ساز (مردادماه ۱۴۰۰)

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۰/۰۷/۱۳، تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۱/۰۵/۰۹

مطالعه پارامترهای تولید نانوذرات طلا-۱۹۹ از طریق تابش هدف پلاتین با استفاده از نوترون‌های حرارتی

امیرحسین عالی نژاد کمال آباد^{۱*}، طیب کاکاوند^۱، محمدرضا عبودزاده رویس^۲ و سعید کاکایی^۲

^۱گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه بین‌المللی امام خمینی، قزوین، ایران.

^۲پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، تهران، ایران.

*قزوین، دانشگاه بین‌المللی امام خمینی، دانشکده علوم پایه، گروه فیزیک، کدپستی: ۳۴۱۴۸۹۶۸۱۸.

پست الکترونیکی: s984187010@edu.ikiu.ac.ir

چکیده

رادیونوکلئید طلا-۱۹۹ با نیمه عمر ۳/۱۴ روز، دارای یک تابش بتامنفی با انرژی ۰/۴۵ MeV (مناسب برای کاربردهای درمانی) و به همراه آن، دارای دو تابش گاما با انرژی‌های ۱۵۸/۷۳ KeV (مناسب برای کاربردهای تصویربرداری) و ۲۰۸/۱۹۶ KeV است. در این پژوهش، ما به شبیه‌سازی محیطی مشابه قلب راکتور تهران پرداختیم و پارامترهای مسئله را مشابه حالت تجربی تعریف کردیم تا بتوانیم بهره تولید طلا-۱۹۹ به روش مونت کارلو با استفاده از کد MCNP تعیین کنیم. از جمله پارامترهای محاسباتی در این تحقیق، سطح مقطع واکنش (n,γ) و تابع تحریک این واکنش است که با استفاده از کدهای هسته‌ای ALICE/ASH و TALYS این پارامترها را محاسبه کردیم و با داده‌های تجربی مقایسه کردیم. با پرتودهی دو نمونه ۱۱ و ۱۵/۵ میلی‌گرمی پودر پلاتین در شار نوترونی (s/cm²·n) در راکتور تهران به مدت حدود ۲۱ ساعت به ترتیب مقدار ۱/۵۵ و ۱/۹۸ میلی‌کوری طلا-۱۹۹ در انتهای بمباران تولید گردید. خلوص رادیونوکلئیدی و رادیوشیمیایی محصول نهایی به روش استخراج حلال-حلال با استفاده از دو ماده اتیل استات با راندمان ۹۹٪ و HDEHP با راندمان ۸۰٪ گزارش گردید. بعد از تولید رادیونوکلئید طلا-۱۹۹ به صورت خالص و بدون حامل، نانوذرات رادیواکتیو طلا-۱۹۹ را به روش ترکویچ^۱ با استفاده از ماده احیاکننده تری‌سدیم‌سیترات سنتز کردیم و در نهایت با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی^۲، به ارزیابی ریخت‌شناسی^۳ نانوذرات پرداختیم. میانگین ابعاد نانوذرات ۵۰ نانومتر محاسبه شد.

کلیدواژگان: رادیوایزوتوپ، طلا-۱۹۹، نانوذرات، شبیه‌سازی، مونت کارلو، بهره تولید، نوترون‌های حرارتی.

۱. مقدمه

در این پروژه تلاش می‌گردد تا رادیونوکلئید ^{۱۹۹}Au با استفاده از شامل جذب نوترون توسط پلاتین-۱۹۸ و به دنبال آن از واپاشی راکتور تحقیقاتی تهران و از طریق واکنش غیرمستقیم (n,γ) که بتا منفی پلاتین-۱۹۹ (با نیمه‌عمر ۳۰/۸ دقیقه) تولید شود و

^۱ Turkevich

^۲ Scanning Electron Microscopy (SEM)

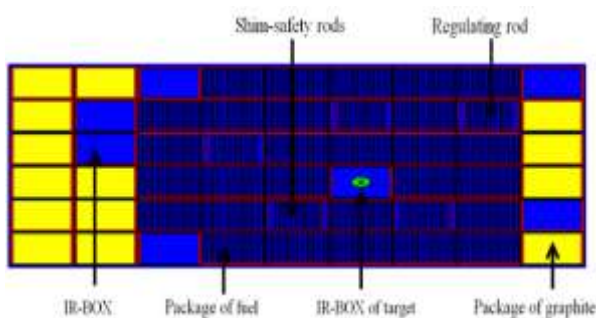
^۳ Morphology

۲. بخش شبیه‌سازی تحقیق

۱.۲. شبیه‌سازی قلب راکتور با کد MCNPX-2.6

به‌منظور بررسی تولید طلا-۱۹۹ از طریق پرتودهی پلاتین طبیعی در راکتور تحقیقاتی تهران، ابتدا باید شبیه‌سازی قلب راکتور انجام شود [۷]. برای شبیه‌سازی تولید رادیونوکلئید در فایل ورودی کد که در آن مشخصات کامل قلب تعریف شده است با هندسه تعریف شده برای قرارگیری نمونه (واقع در ویال شیشه-ای و ظرف آلومینیومی)، برنامه برای یک محل پرتودهی اجرا می‌شود [۹،۸].

دو نمونه از ماده هدف شامل ۱۱ و ۱۵/۵ میلی گرم پودر پلاتین طبیعی در محل پرتودهی در معرض شار نوترون‌های حرارتی $n / (cm^2 \cdot s) = 4 \times 10^{13}$ است که درون یک ویال شیشه‌ای با ابعاد ۴۱/۶ میلی‌متر ارتفاع، ۸ میلی‌متر قطر خارجی و ۶/۴ میلی‌متر قطر داخلی است که خود درون یک ظرف آلومینیوم با ابعاد ۷۰ میلی‌متر ارتفاع، ۲۴/۸ میلی‌متر قطر بیرونی و ۲۳/۴ میلی‌متر قطر داخلی قرار گرفته است. این ظرف آلومینیومی باید در مکان مناسبی از باکس‌های پرتودهی راکتور تهران قرار داده شود [۹]. با در نظر داشتن این شرایط، هندسه مناسب ماده هدف طراحی شد و برای مکان هدف در باکس پرتودهی، شبیه‌سازی انجام شد و با استفاده از کارت FM۴ به صورت مستقیم اکتیویته اشباع محصول به دست آمد [۱۰]. شماتیکی از چیدمان قلب راکتور به همراه محل قرارگیری هدف در شکل ۱ نشان داده شده است.



شکل (۱): نمای از چیدمان قلب راکتور و محل قرارگیری نمونه.

فرآیند تولید رادیونوکلئید ^{199}Au در راکتور، از طریق شبیه‌سازی مونت کارلو بررسی گردد و در آخر نانوذرات طلا-۱۹۹ سنتز شود. سطح مقطع واکنش به‌طور متوسط ۳/۸ بارن است [۱]. استفاده از پلاتین طبیعی به‌عنوان هدف منجر به تولید هم‌زمان پلاتین-۱۹۳ و ۱۹۷ می‌شود که در نتیجه طلا-۱۹۷ غیراکتیو تولید می‌شود و اکتیویته ویژه طلا-۱۹۹ کاهش می‌یابد [۲].

استفاده از هدف‌های غنی شده برای رسیدن به سطوح اکتیویته بالا و جلوگیری از واپاشی دیگر رادیونوکلئیدهای پلاتین لازم است. تولید آزمایشی بر روی هدف پلاتین طبیعی انجام گردید که توسط نوترون‌های حرارتی در راکتور طی مدت زمان مشخص مورد بمباران قرار گرفتند و در اثر گسیل گاما و بتا منفی نهایتاً به طلا-۱۹۹ تبدیل شدند [۳،۴].

استخراج شیمیایی به‌منظور بررسی و مقایسه راندمان جداسازی و خلوص طلا-۱۹۹ به دست آمده، به دو روش انجام شد. روش اول جداسازی طلا-۱۹۹ از پودر پلاتین پرتودهی شده، استخراج حلال-حلال با استفاده از اتیل استات بود که راندمان بالای ۹۹٪ را داشت و روش دوم جداسازی طلا-۱۹۹ از پودر پلاتین پرتودهی شده، استخراج حلال-حلال با استفاده از HDEHP بود که راندمان آن بالای ۸۰٪ گزارش شد [۵،۶].

خلوص رادیونوکلئیدی و رادیوشیمیایی محصول نهایی به دست آمده به روش استخراج حلال-حلال با استفاده از اتیل استات به ترتیب بالای ۹۹/۹٪ و ۹۹٪ گزارش گردید. بعد از تولید طلا-۱۹۹ بدون حامل، مرحله آخر این تحقیق، سنتز نانوذرات طلا-۱۹۹ است که با استفاده از تکنیک ترکیب به روش به‌کارگیری ماده احیاکننده تری‌سدیم‌سیترات این کار صورت گرفت [۶]. نتایج حاصل از این بخش با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی، نانوذراتی با میانگین ابعاد ۵۰ نانومتر بود.

۳. بخش تجربی تحقیق (تولید طلا-۱۹۹ و سنتز نانوذرات رادیواکتیو)

۱.۳. مواد و تجهیزات مورد نیاز

اسیدکلریدریک، اسیدنیتریک، سیکلوهگزان، اکتانل و اتیل‌استات ساخت شرکت مرک خریداری گردیدند. رزین HDEHP ساخت سیگما-آلدریج تهیه گردید. پودر پلاتین طبیعی اسفنجی با خلوص ۹۹/۹٪ ساخت شرکت سیگما-آلدریج خریداری گردید.

آشکارساز ژرمانیم با خلوص بالا جهت گاما اسپکتروسکوپی برای اندازه‌گیری اکتیویته نمونه، مدل HPGe detector DSG model NIGC1040, Germany متصل شده به یک دستگاه تبعیض‌گر چندکاناله Multi-Channel Analyzer MCA دستگاه ICP^۲، مدل Elmer Optima 2100 DV ICP-OES instrument برای محاسبه ناخالصی محصول نهایی. نرم‌افزار InterWinner نسخه 7.0 JTECH instruments برای جمع‌آوری و پردازش طیف گاما و میکروسکوپ الکترونی روبشی SEM مدل (JEOL, LTE, Tokyo, Japan) 1400 از مواد و تجهیزات مورد استفاده در این پروژه بودند.

۲.۳. فرآیند رادیوشیمی و جداسازی طلا-۱۹۹

با پایان یافتن عملیات پرتودهی در رآکتور و انتقال ظرف آلومینیومی حاوی نمونه‌های پرتودیده به آزمایشگاه، فرآیند خارج کردن لوله‌های کوارتزی حاوی پودر پلاتین بمباران شده با استفاده از کاتر برقی در داخل سلول سربی انجام می‌پذیرد [۱۹،۱۲]. با خارج کردن نمونه‌های پرتودیده شیمی جداسازی نمونه‌ها را به دو روش استخراج حلال-حلال، یک بار با استفاده از محلول اتیل‌استات [۱۳] و بار دیگر با به‌کارگیری محلول HDEHP [۱۴،۱۵] به شرح زیر انجام می‌پذیرد.

برای محاسبه سطح مقطع واکنش و محاسبه تابع تحریک از کد TALYS و کد ALICE/ASH استفاده شد و سعی بر آن شد تا تمامی پارامترهای فایل ورودی این کدها مطابقت با شرایط تجربی را داشته باشد و در نهایت فایل‌های خروجی در هر کدام از این کدها برای گزارش در اختیار قرار گرفت.

۲.۲. تعیین بهره تولید

هرگاه ماده هدفی در رآکتور تحت بمباران نوترونی قرار گیرد، مقدار اکتیویته ایجاد شده برابر خواهد بود با:

$$\frac{dN'}{dt} = \phi \sigma_{act} N_t \quad (1)$$

که در رابطه ۱، N' تعداد اتم‌های فعال شده، ϕ شار نوترونی، σ_{act} سطح مقطع ماده هدف و N_t تعداد کل اتم‌های هدف است [۱۱].

از آنجایی که رادیوایزوتوپ تولید شده در رابطه ۱ حین بمباران متناسب با نیمه‌عمر آن واپاشی می‌کند، بنابراین می‌توان آن را به فرم رابطه ۲ اصلاح نمود:

$$\frac{dN'}{dt} = \phi \sigma_{act} N_t - \lambda N' \quad (2)$$

که در این رابطه، $\lambda N'$ بیان‌کننده سرعت واپاشی هسته‌های تولید شده است. با حل معادله ۲، مقدار اکتیویته تولید شده رادیوایزوتوپ بر حسب زمان بمباران t برابر خواهد بود با:

$$S = \frac{0.6\phi\sigma}{A} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3)$$

که در رابطه ۳، S اکتیویته تولید شده برحسب بکرل بر گرم، ϕ شار نوترونی برحسب $n/(s.cm^2)$ ، σ سطح مقطع برخورد برای تولید رادیوایزوتوپ مورد نظر برحسب بارن، A وزن اتمی ماده هدف، λ ثابت واپاشی و t زمان بمباران هدف است.

^۲ inductively Coupled Plasma

^۱ HPGe

فوق را به ۱۰ میلی‌لیتر محلول M ۶/۵ آمونیاک در یک قیف جداکننده افزوده و سپس با افزودن ۱۰ میلی‌لیتر محلول HDEHP ۰/۵٪ و چند قطره محلول اکتانل آن‌ها را به کمک جریان هوای خشک هم می‌زنیم. پلاتین توسط فاز آلی HDEHP جدا و طلا-۱۹۹ در فاز آبی باقی می‌ماند. به منظور بررسی خلوص و راندمان جداسازی از هر دو فاز آبی و آلی نمونه‌هایی جهت بررسی با HPGe تهیه و ارسال می‌شود.

۳.۳. فرآیند سنتز نانوذرات طلا-۱۹۹

بخش آخر این تحقیق سنتز نانوذرات طلا-۱۹۹ است که به روش ترکیب این کار دنبال شد [۱۲]. ۲ میلی‌لیتر محلول NaAuCl_4 با غلظت نیم میلی‌مولار را در یک ویال ۷ شکل با ۱۵ میکرولیتر از محلول طلا-۱۹۹ به دست آمده در مراحل فوق‌الذکر ترکیب کردیم. سپس ویال حاوی نمونه را بر روی هیتر استیرر هم‌زمان حرارت‌دهی و با استفاده از مگنت هم زدیم. زمانی که دمای نمونه به نقطه جوش رسید، ۲۰۶ میکرولیتر محلول سدیم سیترات با غلظت ۳۸/۸ میلی‌مولار را به صورت قطره چکانی به نمونه اضافه کردیم. رنگ نمونه رفته رفته از زرد طلایی به قرمز شرابی تغییر کرد که این خود گواهِ بر درست انجام شدن سنتز نانوذرات ماست. در آخر با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روشی نمونه حاصل مورد بررسی قرار گرفت.

۴. نتایج

۴.۱. نتایج شبیه‌سازی

پس از اجرای برنامه MCNP و شبیه‌سازی مسئله، توزیع شار نوترون‌های حرارتی در محل هدف یا نمونه در شکل ۲ نشان داده شده است.

۱.۲.۳. جداسازی طلا-۱۹۹ از پودر پلاتین پرتودهی شده به روش استخراج حلال-حلال با استفاده از اتیل‌استات نمونه پودر پلاتین پرتودهی شده را در یک ارلن ته گرد با ۴ میلی‌لیتر تیزآب سلطانی^۱ حل می‌نمایم. محلول به دست آمده را خشک نموده و سپس در ۵ میلی‌لیتر اسید کلریدریک غلیظ حل نموده و مجدداً بر روی هیتر حرارت می‌دهیم تا محلول تبخیر و بخار قهوه‌ای رنگ متوقف شود و مجدداً به آن ۵ میلی‌لیتر اسید کلریدریک غلیظ اضافه و آن را تبخیر می‌نمایم تا از خروج کامل HNO_3 از محلول مطمئن و سپس به باقی‌مانده نمونه ۱۰ میلی‌لیتر اسید کلریدریک M ۵ اضافه می‌نمایم. نمونه‌ای از این محلول برای اندازه‌گیری و تعیین ناخالصی‌های تولید شده در طول زمان پرتودهی پودر پلاتین تهیه و با استفاده از تکنیک اسپکتروسکوپی گاما مجهز به دکتور ژرمانیم با درجه خلوص بالا (HPGe) بررسی می‌گردد. محلول باقیمانده به یک قیف جداکننده منتقل و ۱۰ میلی‌لیتر محلول اتیل‌استات به آن اضافه می‌کنیم. مخلوط توسط جریان هوای خشک همزده می‌شود و سپس فاز آلی حاوی طلا-۱۹۹ جدا شده و مجدداً به فاز آبی ۱۰ میلی‌لیتر محلول اتیل‌استات اضافه نموده و توسط جریان هوا همزده می‌شود. با جداسازی فاز آلی، فرآیند برای بار سوم تکرار و سپس سه فاز آلی جمع‌آوری شده با یکدیگر ترکیب می‌شوند. نمونه‌هایی از فاز آبی و آلی جهت بررسی درصد خلوص رادیونوکلئیدی توسط HPGe تهیه می‌شوند.

۲.۲.۳. جداسازی طلا-۱۹۹ از پودر پلاتین پرتودهی شده به

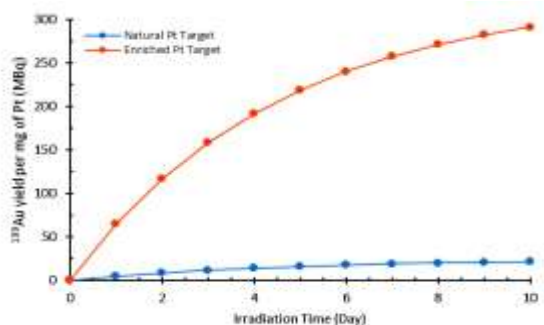
روش استخراج حلال-حلال با استفاده از HDEHP

در این روش همانند مرحله قبل پودر پلاتین پرتودهی شده در ۴ میلی‌لیتر تیزآب سلطانی حل می‌گردد. نمونه‌ای جهت بررسی اکتیویته و رادیونوکلئیدهای موجود توسط آشکارساز HPGe تهیه و ارسال می‌شود. حجم کمی (۵۰۰ میکرولیتر) از محلول

^۱ Aqua regia

۲.۴. بهره تولید طلا-۱۹۹

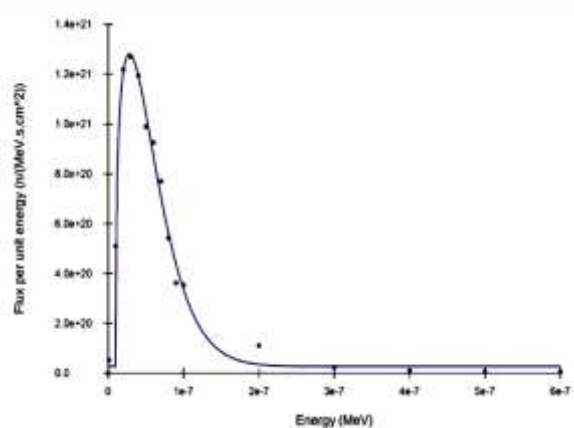
با توجه به رابطه بهره تولید که در قسمت ۲.۲ شرح داده شد، اگر از پلاتین غنی شده استفاده شود به طوریکه ناخالصی در هدف وجود نداشته باشد، بهره تولید بالاتر خواهد بود. این موضوع در شکل ۴ برای هدف طبیعی و غنی شده پلاتین رسم شده است. در اینجا شار نوترون‌ها $3 \times 10^{13} \text{ n/(cm}^2\cdot\text{s)}$ در نظر گرفته شده است. این نمودارها نشان می‌دهد که در زمان تابش یکسان، بهره طلا-۱۹۹ که با هدف پلاتین غنی شده به دست آمده، به مراتب بیش‌تر از بهره‌ای است که با هدف پلاتین طبیعی به دست آمده و سهم ناخالصی‌ها در هدف پلاتین طبیعی کاملاً مشهود است.



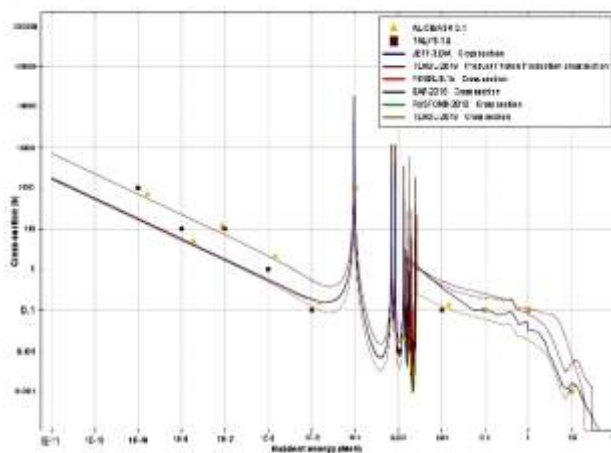
شکل (۴): مقایسه بهره تولید طلا-۱۹۹ با هدف پلاتین غنی شده و طبیعی برحسب زمان تابش در شار نوترونی $3 \times 10^{13} \text{ n/(cm}^2\cdot\text{s)}$.

در صورتی که از پلاتین طبیعی جهت تولید طلا-۱۹۹ استفاده شود، رادیونوکلئیدهای دیگری نیز تشکیل می‌شود که بهره تولید آن‌ها در مقایسه با طلا-۱۹۹ در شکل ۵ نشان داده شده است. طبق این نمودار، در زمان تابش کوتاه در مقایسه با نیمه‌عمر محصول طلا-۱۹۹، فعالیت رادیواکتیو با نرخ ثابت افزایش یافته و سپس با افزایش بیش‌تر، سهم تولید طلا-۱۹۹ افزایش و سهم ناخالصی‌های آن کاهش می‌یابد. با در نظر گرفتن دو هدف با وزن ۱۱ و ۱۵/۵ میلی‌گرم پودر پلاتین طبیعی به منظور ارزیابی نتایج شبیه‌سازی و با توجه به شکل ۶، که مقدار اکتیویته طلا-۱۹۹ به دست آمده از بمباران پلاتین طبیعی را در شار نوترونی $4 \times 10^{13} \text{ n/(cm}^2\cdot\text{s)}$ در طی زمان‌های مختلف نشان می‌دهد،

طیف توزیع انرژی نوترون‌های حرارتی در محل قرارگیری هدف (Irradiation box) توزیعی شبیه توزیع ماکسول داشته و بیش‌تر نوترون‌ها به دلیل اثر کندکنندگی آب، محدوده انرژی زیر 0.1 eV را دارا هستند. در شکل ۳، تابع تحریک واکنش $^{198}\text{Pt}(n, \gamma)^{199}\text{Pt} \rightarrow ^{199}\text{Au}$ توسط کدهای TALYS و ALICE محاسبه و رسم شده است. همان‌طور که در شکل مذکور مشاهده می‌شود، در مقایسه با داده‌های تجربی تابع تحریک واکنش مورد نظر، خروجی داده‌های تئوری با داده‌های تجربی تقریباً مطابقت دارد که این موضوع گواه بر صحت محاسبات بخش تئوری در خصوص به دست آوردن تابع تحریک است.



شکل (۲): توزیع شار نوترون‌های حرارتی بر واحد انرژی در زمان بمباران.



شکل (۳): تابع تحریک واکنش $^{198}\text{Pt}(n, \gamma)^{199}\text{Pt} \rightarrow ^{199}\text{Au}$ محاسبه شده توسط کدهای TALYS و ALICE/ASH.

۴.۴. نتایج بخش تجربی تحقیق (تولید طلا-۱۹۹ و سنتز نانوذرات رادیواکتیو)

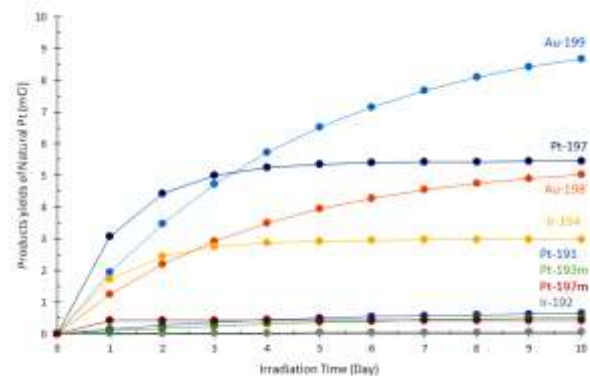
نمودار طیف گامای هدف پلاتین طبیعی پرتودهی شده قبل از جداسازی برای نمونه ۱۵/۵ و ۱۱ میلی‌گرمی، که با استفاده از دستگاه HPGe به‌دست آمده، در شکل‌های ۷ (الف) و (ب) نشان داده شده است.

مقدار اکتیویته طلا-۱۹۹ تولید شده تحت شرایط بمباران ذکر شده برای نمونه ۱۵/۵ و ۱۱ میلی‌گرمی به‌ترتیب برابر با ۱/۹۸ و ۱/۵۵ میلی‌کوری می‌باشد. مقدار اکتیویته طلا-۱۹۹ محاسبه شده از طریق MCNP برای نمونه ۱۱ میلی‌گرمی برابر ۱/۶۵ میلی‌کوری و برای نمونه ۱۵/۵ میلی‌گرمی برابر ۲/۳۲ میلی‌کوری در انتهای بمباران است.

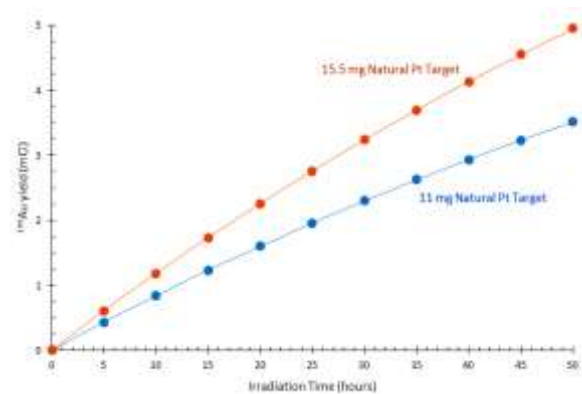
مقایسه بین نتایج محاسباتی و عملی، نشان‌دهنده قابل اعتماد بودن روش‌های به‌کارگیری شده در پیش‌بینی تولید طلا-۱۹۹ است. در جدول ۲ مشاهده می‌شود، اکتیویته طلا-۱۹۹ تولید شده در عمل کمتر از مقدار محاسباتی آن می‌باشد. این اختلاف می‌تواند ناشی از عوامل مختلفی هم‌چون اثر خود حفاظی هدف، تغییر توان رآکتور، خطا در آماده‌سازی نمونه جهت پرتودهی و یا اندازه‌گیری باشد.

در شکل ۷ الف، نمودار مربوط به نمونه ۱۵/۵ میلی‌گرمی است که قبل از جداسازی شیمیایی به وسیله دتکتور HPGe به‌دست آمده است. جداسازی و تخلیص شیمیایی این نمونه به روش حلال-حلال با استفاده از اتیل استات انجام شده است. در این نمودار طیف‌های مربوط به طلا-۱۹۹ و پلاتین و سایر ناخالصی‌ها احتمالی نشان داده شده است و بیش‌ترین احتمال گسیل گامای طلا-۱۹۹ در انرژی ۱۵۸ Kev می‌باشد. شکل‌های ۸ الف و ب نشان‌دهنده طیف گامای محلول‌های نهایی بعد از انجام فرآیند جداسازی شیمیایی می‌باشد. در این جداسازی فاز آبی و آلی از یکدیگر جدا شده‌اند.

می‌توان مقدار محاسباتی طلا-۱۹۹ را پس از زمان مشخص و در انتهای بمباران، پیش‌بینی کرد.



شکل (۵): بهره تولید طلا-۱۹۹ و ناخالصی‌های آن با ۱۵ میلی‌گرم پودر پلاتین طبیعی برحسب زمان تابش.



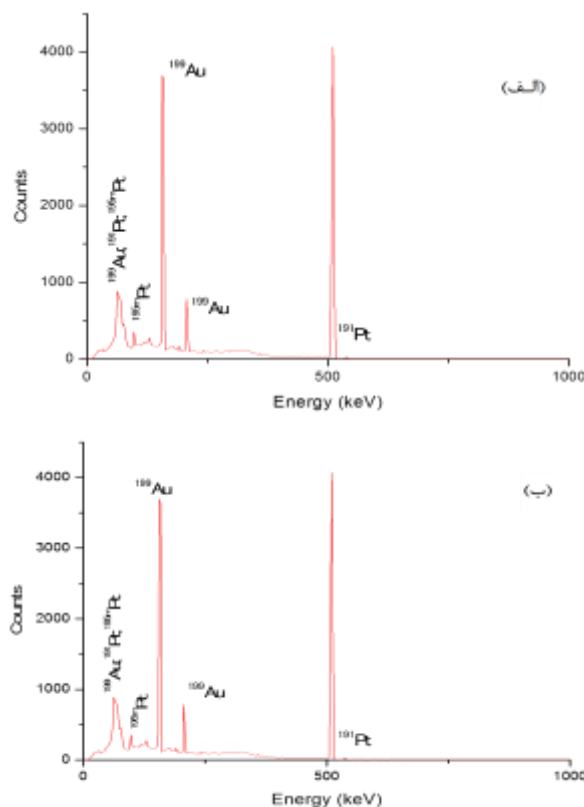
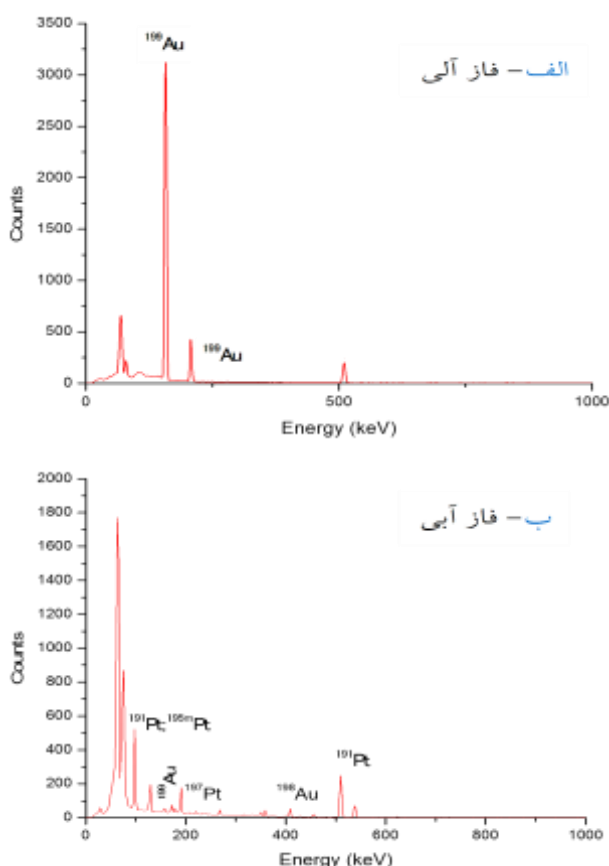
شکل (۶): بهره تولید طلا-۱۹۹ با دو هدف ۱۱ و ۱۵/۵ میلی‌گرم پودر پلاتین طبیعی برحسب زمان تابش (شار نوترونی $4 \times 10^{13} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$).

با بمباران دو هدف ۱۱ و ۱۵/۵ میلی‌گرم پلاتین طبیعی با شار نوترونی $4 \times 10^{13} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ در مدت ۲۱ ساعت و ۱۰ دقیقه و در پایان بمباران، امکان تولید طلا-۱۹۹ به مقدار ۱/۶۵ و ۲/۳۲ میلی‌کوری وجود دارد.

۳.۴. پرتودهی نوترونی نمونه پلاتین

روش پرتودهی نوترونی نمونه‌های ۱۱ و ۱۵/۵ میلی‌گرمی پلاتین همانند روش به‌کاربرده شده توسط عبودزاده و همکاران انجام شد [۱۶-۲۰]. طبق این روش، درب ورودی محفظه آلومینیومی حاوی نمونه‌ها مسدود و با استفاده از جوشکاری کاملاً درزبندی می‌گردد.

میلی گرمی است که قبل از جداسازی شیمیایی به وسیله دکتور HPGe به دست آمده است.



شکل (۷): طیف گامای نمونه محلول پلاتین پرتو دهی شده در شار $n \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ به مدت ۲۱ ساعت و ۱۰ دقیقه (الف) نمونه ۱۵/۵ میلی گرمی و (ب) نمونه ۱۱ میلی گرمی.

شکل (۸): (الف) طیف گاما فاز آلی و (ب) فاز آبی در انتهای فرآیند جداسازی طلا-۱۹۹ با استفاده از اتیل استات.

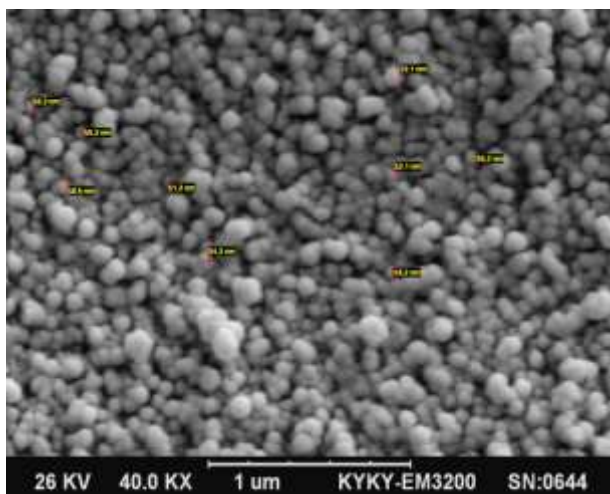
جدول (۲): مقادیر محاسبه شده و تجربی اکتیویته دو نمونه ۱۱ میلی گرمی و ۱۵/۵ میلی گرمی.

وزن نمونه (mg)	اکتیویته محاسبه شده از طریق MCNP (mCi)	اکتیویته به دست آمده از روش عملی (mCi)
۱۱/۰	۱/۶۵	۱/۵۵
۱۵/۵	۲/۳۲	۱/۹۸

جداسازی و تخلیص شیمیایی این نمونه به روش حلال-حلال با استفاده از HDEHP انجام شده است. شکل ۹ الف، طیف گاما فاز آلی است. در این طیف، علاوه بر پیک طلا-۱۹۹، حضور پلاتین-۱۹۱ به عنوان ناخالصی رادیونوکلئیدی در فاز آلی قابل مشاهده است. خلوص رادیونوکلئیدی طلا-۱۹۹ در فاز آلی که محصول فرآیند می‌باشد، برابر ۹۲/۳٪ است. شکل ۹ ب، طیف گاما فاز آبی در انتهای جداسازی می‌باشد. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود، ناخالصی‌های رادیونوکلئیدی پلاتین به همراه مقادیر قابل ملاحظه‌ای از طلا-۱۹۹ در این فاز وجود دارند. درصد فراوانی طلا-۱۹۹ در این فاز بیش از ۲۹/۸٪ است.

شکل ۸ الف، طیف گاما فاز آلی است که حاوی طلا-۱۹۹ می‌باشد. همان‌طور که مشاهده می‌شود اثری از ناخالصی پلاتین در این فاز وجود ندارد و تنها رادیونوکلئید طلا-۱۹۹ در فاز آلی وجود دارد. شکل ۸ ب، طیف گاما فاز آبی در انتهای جداسازی می‌باشد. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود، ناخالصی‌های رادیونوکلئیدی پلاتین به همراه مقادیر ناچیزی از طلا در این فاز باقی مانده‌اند. درصد طلا-۱۹۹ در این فاز کم‌تر از ۰/۴۸٪ است. شکل ۷ ب، نمودار مربوط به نمونه ۱۱

جدول (۳): مقادیر راندمان جداسازی و خلوص رادیوشیمیایی در دو روش جداسازی با اتیل‌استات و HDEHP. بعد از تولید رادیونوکلید طلا-۱۹۹ به صورت بدون حامل و خالص، همان‌طور که در بخش قبل بیان شد، بخش آخر این تحقیق سنتز نانوذرات طلا-۱۹۹ است که به روش ترکیب این کار دنبال شد. در این پژوهش، به‌منظور شناسایی و تعیین شکل نانوذرات طلا به فرم سیتراته از میکروسکوپ الکترونی روبشی استفاده می‌شود.

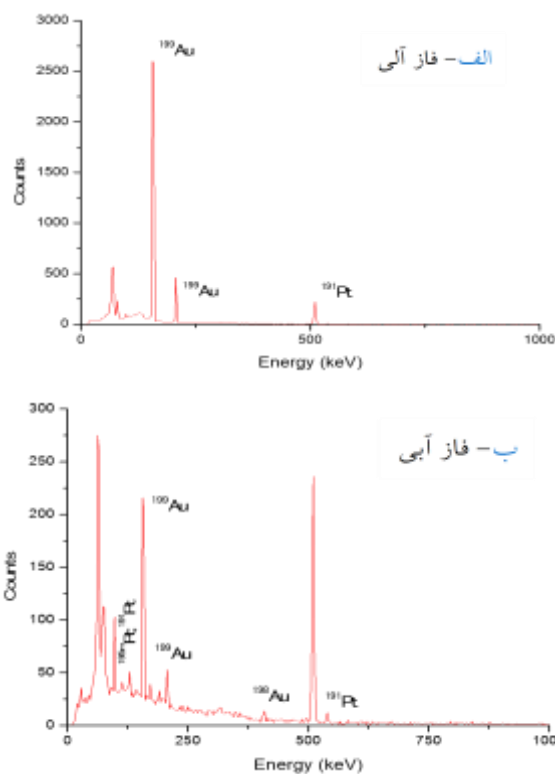


شکل (۱۰): تصویر SEM نانوذرات طلا-۱۹۹ با میانگین سایز ۵۰ نانومتر.

به‌منظور کنترل و تعیین اندازه نانوذرات طلای رادیواکتیو برای کاربردهای پزشکی از تکنیک میکروسکوپ الکترونی روبشی استفاده می‌شود. تصویر SEM نشان می‌دهند که میانگین اندازه نانوذرات طلای رادیواکتیو در حدود ۵۰ نانومتر است.

۵. جمع‌بندی

در راکتور تهران به‌مدت حدود ۲۱ ساعت اندازه‌گیری شد. به این ترتیب که با کمک کد MCNP ابتدا اکتیویته پلاتین-۱۹۹ حساب شد و سپس با استفاده از معادلات دیگر، اکتیویته طلا-۱۹۹ حساب شد. اکتیویته طلا-۱۹۹ تولید شده در پرتودهی نمونه ۱۱ میلی‌گرمی برابر $1/55 \pm 0/01$ میلی‌کوری و برای نمونه ۱۵/۵ میلی‌گرمی برابر $1/98 \pm 0/01$ میلی‌کوری در انتهای بمباران به‌دست آمد (برای نمونه ۱۵/۵ میلی‌گرمی، اکتیویته پلاتین-۱۹۱



شکل (۹): طیف گاما (الف) فاز آلی و (ب) فاز آبی در انتهای فرآیند جداسازی طلا-۱۹۹ با استفاده از HDEHP.

خلوص رادیوشیمیایی در روش اول که روی نمونه ۱۵/۵ میلی‌گرمی و با استفاده از اتیل‌استات انجام شد. بیش از ۹۹٪ و در روش دوم که بر روی نمونه ۱۱ میلی‌گرمی و با استفاده از HDEHP انجام شد برابر ۹۲/۳٪ گزارش شد. از نتایج به‌دست آمده در رابطه با راندمان شیمیایی و خلوص رادیوشیمیایی طلا-۱۹۹ از دو روش (جدول ۳)، مشاهده می‌گردد که روش استخراج با حلال به کمک اتیل‌استات از برتری قابل توجهی در مقایسه با روش استخراجی با HDEHP برخوردار است.

	جداسازی با اتیل‌استات	جداسازی با HDEHP
راندمان شیمی جداسازی	٪ ۹۹/۴	٪ ۸۳/۶
خلوص رادیوشیمیایی	>٪ ۹۹/۰	٪ ۹۲/۳

در این پژوهش اکتیویته محصول طلا-۱۹۹ از طریق واکنش پلاتین با وزن‌های ۱۱ و ۱۵/۵ میلی‌گرم در شار نوترونی 4×10^{13} $^{198}Pt(n, \gamma) \rightarrow ^{199}Pt$ با تابش دهی دو نمونه از هدف

رادیوشیمیایی در روش اول که روی نمونه ۱۵/۵ میلی‌گرمی و با استفاده از اتیل‌استات انجام شد، بیش از ۹۹٪ و در روش دوم که بر روی نمونه ۱۱ میلی‌گرمی و با استفاده از HDEHP انجام شد، برابر ۹۲/۳٪ گزارش شد. همچنین، راندمان جداسازی برای روش اول که با اتیل‌استات بر روی نمونه ۱۵/۵ میلی‌گرمی انجام شد برابر ۹۹/۴٪ و برای روش دوم که با HDEHP بر روی نمونه ۱۱ میلی‌گرمی انجام شد برابر ۸۳/۶٪ به دست آمد. در نهایت هم در این پژوهش ما توانستیم نانوذرات طلا-۱۹۹ را در ابعاد میانگین ۵۰ نانومتر را با استفاده از تکنیک ترکوویچ سنتز کنیم.

برابر ۱۰۸/۲±۰/۲ میکروکوری، برای پلاتین-۱۹۵m برابر ۶۷۸/۱±۵/۴ میکروکوری در انتهای زمان بمباران به دست آمد. همچنین اکتیویته محاسبه شده از طریق MCNP و معادلات مربوطه، برای نمونه ۱۱ میلی‌گرمی برابر ۱/۶۵ میلی‌کوری و برای نمونه ۱۵/۵ میلی‌گرمی برابر ۲/۳۲ میلی‌کوری می‌باشد. همان‌طور که در جدول ۳ مشاهده می‌گردد، اکتیویته به دست آمده در عمل کم‌تر از مقدار محاسباتی و مورد انتظار می‌باشد. این اختلاف می‌تواند از عوامل مختلفی هم‌چون خطای انسانی در آماده‌سازی نمونه جهت پرتودهی و یا در انجام جداسازی شیمیایی و یا خطای محاسباتی نشأت گرفته باشد. خلوص

۶. مراجع

۱. ب. گوپال. مبانی دارو سازی هسته‌ای، ترجمه: م. قنادی مراغه، ر. گلی‌پور و ع. بهرامی ساهانی، چاپ و نشر نقش و نگار ایرانیان. ۱۳۸۷.
2. G. Hevesy. The absorption and translocation of lead by plants. *J. Biochem.* 17 (1923) 439-445.
3. S. D. Bunge. Gold Chemistry: Applications and Future Directions in the Life Sciences. *J. Am. Chem. Soc.* 131 (42) (2009) 15565.
4. S. M. Hasany, I. Hanif, I. H. Qureshi. Production of Carrier-free ¹⁹⁹Au From Irradiated Platinum using I-Phenyl-3-methyl-4 trifluoroacetyl-pyrazolone-5 as an Extractant. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 29 (1978) 145-149.
5. M. U. Khandaker, H. Hiromitsu, A. K. Hasan, Production of radio-gold ¹⁹⁹Au for diagnostic and therapeutic applications. *AIP Conf. Proc.* 1704 (1) (2016) 030008.
6. R. L. HEATH, *Gamma-ray Spectrum Catalogue*. 3rd ed., Vol. 2. U.S. Atomic Energy Commission, ANCR-1000-2, 1974.
7. M. Kniseleyr, G. A. Anderw, C. L. Edwards, R. Tanida, Medical Radioisotope Scanning Vol. II, p. 207. STI/PUB/IZ IAEA, Vienna, 1964.
8. E. N. McMillan, M. Kamen, S. Ruben. Neutron-induced radioactivity of the noble metals. *Phys. Rev.* 52 (1937) 375-377.
9. C. Cutler, P. Kan, N. Chanda, S. Jurisson, L. D. Watkinson, J. R. Lever, J. C. Smith, K. V. Katti, R. Kannan, K. Katti. Preparation and use of ¹⁹⁸Au/¹⁹⁹Au for potential applications in cancer therapy and imaging. *Trans. Am. Nucl. Soc.* 103 (2010) 1123-1124.
10. P. Anderson, A. T. Vaughan, N. R. Varley. Antibodies labeled with ¹⁹⁹Au: Potential of ¹⁹⁹Au for radio immunotherapy. *Nucl. Med. Biol.* 15 (3) (1988) 293-297.
11. J. L. Humm. Dosimetric aspects of radiolabeled antibodies for tumor therapy. *J. Nucl. Med.* 27 (9) (1986) 1490-1497.
12. Y. Zhao, B. Pang, H. Luehmann, L. Detering, X. Yang, D. Sultan, S. Harpstrite, V. Sharma, C. S. Cutler, Y. Xia, Y. Liu. Gold nanoparticles doped with ¹⁹⁹Au atoms and their use for targeted cancer imaging by SPECT. *Adv. Healthcare Mater.* 5 (8) (2016) 928-935.
13. J. L. Humm. Dosimetric aspects of radiolabeled antibodies for tumor therapy. *J. Nucl. Med.* 27 (9) (1986) 1490-1497.
14. Y. Fazaeli, O. Akhavan, R. Rahighi, M. R. Aboudzadeh, E. Karimi, H. Afarideh. In vivo SPECT imaging of tumors by ¹⁹⁸, ¹⁹⁹Au-labeled graphene oxide nanostructures. *Mater. Sci. Eng. C* 45 (2014) 196-204.
15. K. V. Vimalnath, S. Chakraborty, A. Dash. Reactor production of no-carrier-added ¹⁹⁹Au for biomedical applications. *Royal Soc. Chem.* 6 (2016) 82832-82841.
16. S. M. Sadeghi, M. R. Aboudzadeh Rovais, N. Zandi, M. Moradi, K. Yousefi. Production assessment of non-carrier-added ¹⁹⁹Au by (n,γ) reaction. *Appl. Radiat. Isot.* 132 (2018) 67-71.
17. M. Vagheian, N. Vosoughi, M. Gharib. Enhanced finite difference scheme for the neutron diffusion equation using the importance function. *Ann. Nucl. Energy* 96 (2016) 412-421.
18. AEOI. Tehran Research Reactor Amendment to the Safety Report. Tehran-Iran, 1989.
19. AEOI. Safety Analysis Report for the Tehran Research Reactor (LEU). Tehran-Iran, 2001.
20. S. F. Hosseini, M. Sadeghi, M. R. Aboudzadeh, M. Mohseni. Production and modeling of radioactive gold nanoparticles in Tehran research reactor. *Appl. Radiat. Isot.* 118 (2016) 361-365.