



利用FLUKA研究加速器生产医用放射性同位素的产额

韩瑞 陈志强 田国玉 石福栋 张鑫 刘丙岩 孙慧

Study of Medical Radioisotopes Production by Accelerator Induced Reactions with FLUKA

HAN Rui, CHEN Zhiqiang, TIAN Guoyu, SHI Fudong, ZHANG Xin, LIU Bingyan, SUN Hui

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.37.2020025>

引用格式:

韩瑞, 陈志强, 田国玉, 石福栋, 张鑫, 刘丙岩, 孙慧. 利用FLUKA研究加速器生产医用放射性同位素的产额[J]. *原子核物理评论*, 2020, 37(4):913–917. doi: 10.11804/NuclPhysRev.37.2020025

HAN Rui, CHEN Zhiqiang, TIAN Guoyu, SHI Fudong, ZHANG Xin, LIU Bingyan, SUN Hui. Study of Medical Radioisotopes Production by Accelerator Induced Reactions with FLUKA[J]. *Nuclear Physics Review*, 2020, 37(4):913–917. doi: 10.11804/NuclPhysRev.37.2020025

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

医用放射性同位素⁹⁹Mo/^{99m}Tc生产现状和展望

Production Status and Technical Prospects of Medical Radioisotope ⁹⁹Mo/^{99m}Tc

原子核物理评论. 2019, 36(2): 170–183 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.36.02.170>

HIAF高能辐照终端感生放射性

Induced Radioactivity at High-energy Irradiation Terminal of HIAF

原子核物理评论. 2018, 35(2): 165–171 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.35.02.165>

先进核能系统结构材料辐照性能研究

Study of Radiation Properties of Structural Materials for Advanced Nuclear Energy Systems

原子核物理评论. 2017, 34(3): 302–309 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.34.03.302>

医用加速器装置的离子源进气系统控制

Design of Ion Source Gas Control Used in Heavy Ion Medical Machine

原子核物理评论. 2019, 36(4): 441–446 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.36.04.441>

HIAF及CiADS项目进展与展望

HIAF and CiADS National Research Facilities: Progress and Prospect

原子核物理评论. 2017, 34(3): 275–283 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.34.03.275>

CiADS固态功率源的可用性设计与分析

Availability Designs and Analyses of Solid-state Amplifiers for CiADS

原子核物理评论. 2018, 35(3): 287–293 <https://doi.org/10.11804/NuclPhysRev.35.03.287>

文章编号: 1007-4627(2020)04-0913-05

利用 FLUKA 研究加速器生产医用放射性同位素的产额

韩瑞¹, 陈志强^{1,2,†}, 田国玉¹, 石福栋¹, 张鑫^{1,2}, 刘丙岩^{1,2}, 孙慧^{1,2}

(1. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000;
2. 中国科学院大学核科学与技术学院, 北京 100049)

摘要: 针对目前核医学广泛关注的医用放射性同位素 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 $^{64,67}\text{Cu}$ 、 $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ 、 $^{82}\text{Sr}/^{82}\text{Rb}$ 、 ^{211}At 、 ^{225}Ac 等, 本文利用 FLUKA 程序对加速器生产上述同位素的产额及产物分布进行了研究。研究表明, 医用放射性同位素的产额随束流能量增加而增加, 增加趋势逐渐降低; 产额随辐照时间的增长而增加, 随辐照后冷却时间的增长而降低, 变化情况主要取决于目标医用同位素的半衰期; 入射束流在同位素靶的有效射程内产生医用放射性同位素, 选取合适的靶厚可以优化目标医用同位素的比活度值等; 此外, 束流能量越高产生的杂质核素种类及产额也相应增加, 合适的辐照能区和辐照时间等, 可以降低后续目标医用同位素分离纯化等工作的复杂程度。本文通过 FLUKA 的计算初步为加速器生产医用同位素提供了重要的依据。

关键词: 放射性医用同位素; 加速器; 产额; FLUKA

中图分类号: O571.53

文献标志码: A

DOI: 10.11804/NuclPhysRev.37.2020025

1 引言

随着核科学技术的快速发展, 医用放射性同位素在核医学中发挥着越来越重要的作用, 被广泛应用于肿瘤的诊断和治疗等^[1-4]。一般放射性同位素药物分为诊断类和治疗类药物, 诊断类主要包括用于核医学成像的 ^{18}F 、 ^{13}N 等, 以及用于甲状腺、骨扫描、心血管等疾病的 ^{123}I 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 等, 这类放射性药物多为正电子和 γ 放射性, 发展相对比较成熟; 治疗类主要包括 β 和 α 放射性同位素药物, 如 β 放射性的 ^{64}Cu 、 ^{90}Y 、 ^{177}Lu 等, α 放射性的 ^{211}At 、 ^{225}Ac 、 $^{223,225}\text{Ra}$ 等。治疗类的医用放射性同位素主要利用核素自身衰变产生的 β 或 α 射线直接照射病灶癌细胞, 产生放射生物学效应及细胞毒性作用, 从而杀死癌细胞, 其中, α 放射性同位素, 因其射线具有能量高、射程短等优点, 具有良好的应用前景, 是放射性同位素药物发展的新趋势; 此外, 还有部分医用放射性同位素, 如 ^{64}Cu 、 ^{68}Ga 等既可以用于诊断成像, 也可用于治疗。

医用放射性同位素主要通过三种方式来生产, 包括反应堆同位素生产技术、加速器生产和放射性核素发生器生产方式等。目前国际上大部分医用放射性同位素的生产主要依赖于反应堆技术^[1, 3-4], 传统的反应堆生产技术工艺复杂、成本高, 而且实验堆数量少、老化严重,

存在一定的核扩散风险。因此依赖于传统反应堆的医用同位素生产方式已经不能满足市场需求。而利用加速器生产医用放射性同位素, 具有灵活高效、系统安全、成本低以及同位素比活度高等优势, 是确保医用放射性同位素安全、稳定供应的重要生产方式。

利用加速器生产医用放射性同位素, 需要确定加速器最佳辐照能区和最佳靶系统等参数。由于一种放射性同位素可以通过多种核反应过程形成, 因此相关核反应的截面数据以及厚靶产额等的研究, 对于加速器生产医用放射性同位素是十分必要的。尽管可以直接利用已有的同位素衰变数据和截面数据计算得到预期的最大产额, 但实际中的厚靶产额总是低于理论计算值, 并且这一差异随着积分束流和靶厚的增加而增大^[2]。在医用放射性同位素生产中, 通常期望产额达到最高、放射性杂质干扰最小, 同时还要考虑制靶的难易和成本、靶耐受高功率束流的能力以及后续的化学分离处理等过程。而生产途径、辐照能区等关键参数的选择对于上述条件是至关重要的。

FLUKA^[5-6] 作为一种免费通用的蒙特卡罗程序, 在核工程和核技术相关的研究中被广泛使用。FLUKA 程序可以高精度地模拟粒子输运以及多种粒子与物质的相互作用过程, 应用领域涵盖辐射屏蔽计算、探测器设计、剂量测量以及放射性治疗等。本文将利用 FLUKA

收稿日期: 2020-01-14; 修改日期: 2020-05-27

基金项目: 国家自然科学基金委员会-中国科学院大科学装置科学研究联合基金(U1832205); 国家自然科学基金资助项目(11875298, 11605257)

作者简介: 韩瑞(1985-), 女, 甘肃靖远人, 副研究员, 博士, 从事原子核与粒子物理研究; E-mail: hanrui516@impcas.ac.cn

† 通信作者: 陈志强, E-mail: zqchen@impcas.ac.cn.

程序研究加速器生产医用放射性同位素的产额与同位素靶和加速器关键参数之间的关系，为加速器生产医用同位素提供依据。

2 计算结果

2.1 医用放射性同位素产额与入射质子束流流强及能量的关系

利用 FLUKA 程序计算了医用放射性同位素的产额

与加速器质子束流流强及能量的关系，计算结果如图 1 所示。计算中同位素靶的厚度均大于质子束在靶内的射程，计算结果是质子束辐照 1h 的 EOB(End of Bombardment) 产额。从图 1 中可以看出，目标医用同位素的产额随入射质子能量及束流流强的增加而增高。在图 2 中可以看出，随着入射质子能量的增加，⁹⁹Mo 产额增加的趋势逐渐降低，因此对于不同的目标医用同位素，应该考虑加速器成本等实际问题，选择合适的辐照能量范围。

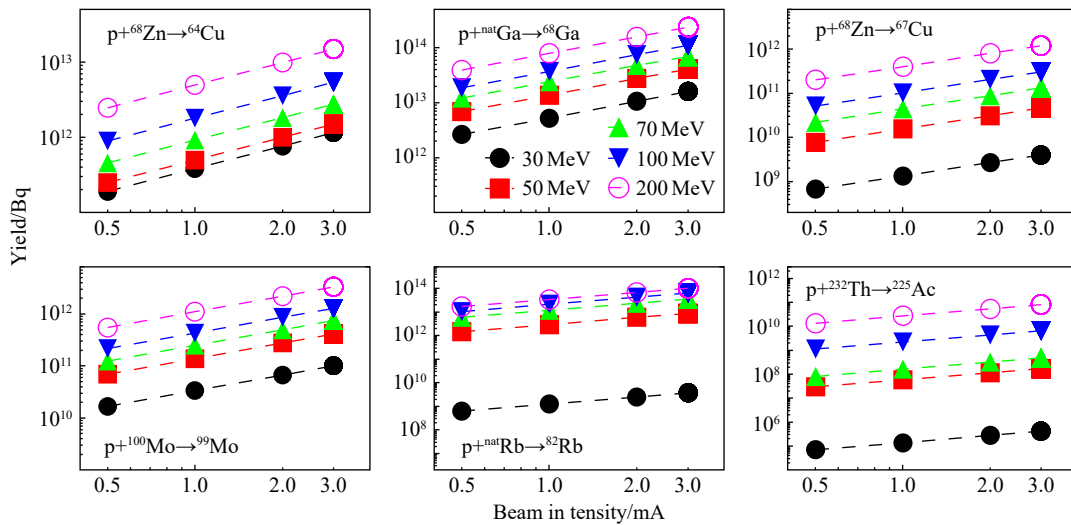


图 1 (在线彩图) 质子打同位素靶产生医用放射性同位素的产额与加速器质子束流流强及能量的关系

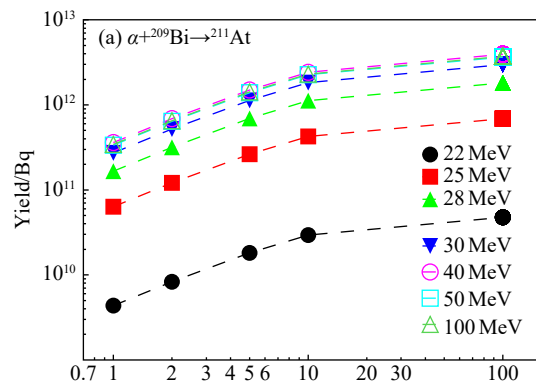
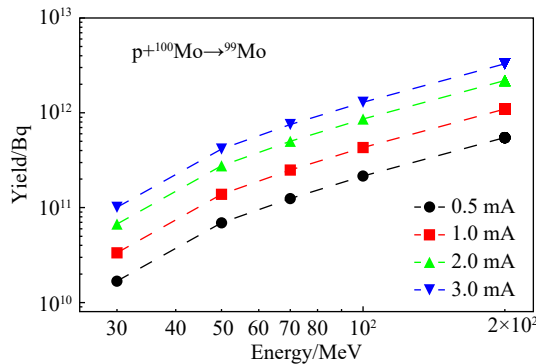


图 2 (在线彩图) 质子打¹⁰⁰Mo靶产生⁹⁹Mo的产额与加速器质子束流能量的关系

2.2 医用放射性同位素产额与束流辐照时间及冷却时间的关系

图 3 和图 4 是利用 FLUKA 程序计算 α 束和质子束打同位素靶产生医用放射性同位素的产额与束流辐照时间及冷却时间的关系，计算中 α 束流流强为 2mA，质子束流流强为 1mA。图 3 的结果是束流辐照结束后的 EOB 产额，可以看出，随着辐照时间的增加，产额增加的趋势逐渐降低。图 3(b) 中，质子入射能量为 40 MeV，辐照时间较长时，^{99m}Tc 的产额显著增高。这是由于质

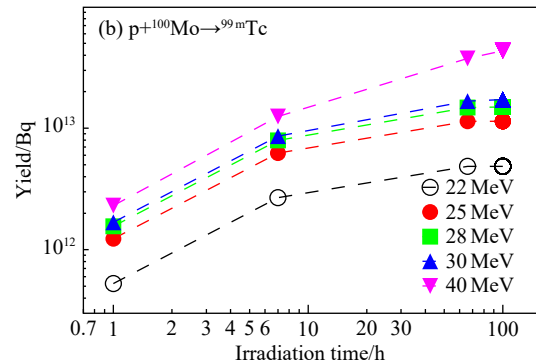


图 3 (在线彩图) 束流打同位素靶产生医用放射性同位素的产额与束流辐照时间的关系

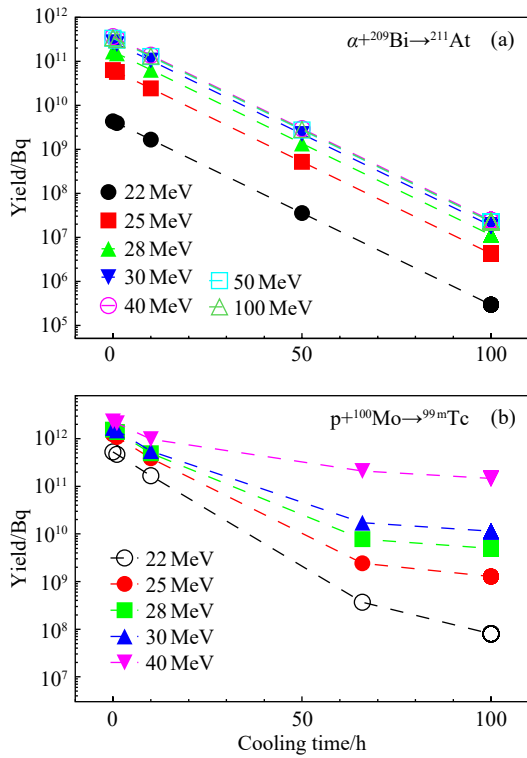


图 4 (在线彩图) 束流打同位素靶产生医用放射性同位素的产额与冷却时间的关系

子打钼靶同时产生 ^{99}Mo 和 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ，且 ^{99}Mo 会直接衰变为 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ，其半衰期(66 h)远大于 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6h)。而 ^{99}Mo 的产生截面在质子能量高于 30 MeV 后逐渐达到最高 [7]，当辐照时间较长时， ^{99}Mo 直接衰变为 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 的贡献会显著增高。实际生产中，加速器的束流辐照时间主要取决于目标医用同位素的半衰期，同时考虑后续分离纯化的复杂程度来确定。

图 4 的结果是束流辐照 1 h 后的放射性同位素产额。随着冷却时间的增长，产额随之降低，这个变化程度由目标医用同位素的半衰期决定，冷却时间的长短与辐照结束后的分离纯化、制药、输运等多种因素有关。图 4(a) 中 ^{211}At 的产额随冷却时间的变化趋势与图 4(b) 中的 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 不同，这与图 3(b) 中提到的原因一致，也是由于质子打钼靶产生 ^{99}Mo 会直接衰变为 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 而引起的。图中的结果是 FLUKA 计算得到的 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 的累积总产额。当质子入射能量为 40 MeV 时， $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 的总产额随冷却时间的衰减趋势更加缓慢，因此，在相同的冷却时间下，该入射能量可以有效提高 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 的利用率。

2.3 医用放射性同位素产额与靶厚关系

图 5 给出了 α 束和质子束分别在铋靶和钼靶中的射程与束流入射能量的关系。图 6 是利用 FLUKA 程序计算 α 束和质子束打同位素靶产生医用放射性同位素的产

额与靶厚的关系。计算结果是束流流强为 1 mA，辐照 1 h 后的 EOB 产额，从图 6(a) 和 (b) 中可以看出，在束流全阻止的情况下(阻止束流所需的靶厚可从图 5 中获得)，随着入射能量的增加，医用同位素的产额逐渐增

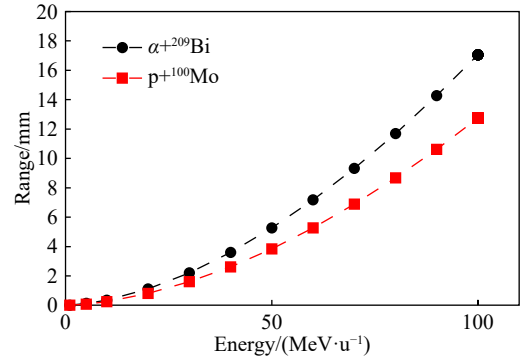


图 5 (在线彩图) α 束打铋靶、质子束打钼靶射程与入射能量的关系

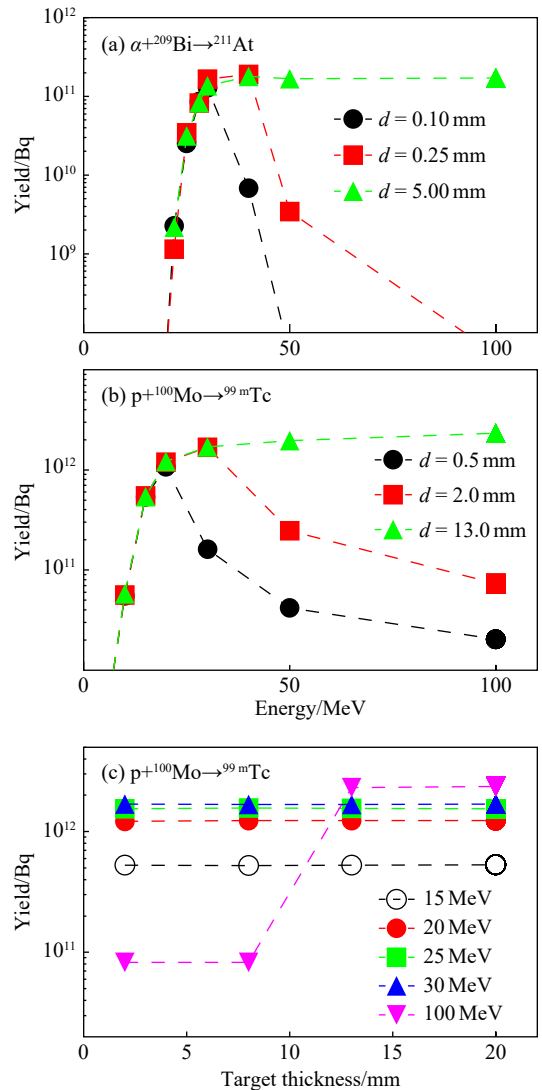


图 6 (在线彩图) 束流打同位素靶产生医用放射性同位素的产额与靶厚关系

加至饱和状态。在入射束流穿透靶，未完全阻止束流的情况下，能量高于一定值时同位素产额迅速下降，这是由于目标同位素的产生截面近似高斯分布^[7-8]，在某一能量处具有峰值。当入射束流能量更高，与靶核相互作用的有效能量会越低，使得目标同位素的产额降低。从图6(c)中也可以看出，在靶完全阻止入射能量的情况下，随着靶厚的增加，医用同位素的产额不再增加，当入射束流穿透靶时，靶上产生的目标医用同位素的产额较低，入射能量越高产额越低。

2.4 医用放射性同位素生产中的主要杂质核素与入射束流能量的关系

图7给出了质子束打钍靶产生碎片的质量产额分布，计算的结果是束流流强为2mA，能量为120MeV，辐照时间为10d后的EOB产额。质子打钍靶发生散裂反应可以产生⁸⁹Sr、²²³Ra和²²⁵Ac等医用同位素，但同时会产生大量的其它同位素碎片，总活度较高，因此后续的目标医用同位素分离纯化非常复杂。

目标医用同位素的生产过程会产生大量杂质核素，一般主要为靶核附近的同位素，但也受反应类型的影响，如质子打钍靶发生散裂反应，会产生质量范围很广的杂质核素，如图7所示。由于与目标医用同位素Z值相等

或接近的杂质核素的化学和物理性质与其相似，这些杂质核素是分离过程需要重点考虑的。图8给出了1mA的束流辐照同位素靶1h后产生的主要杂质核素的产额与束流能量的关系，从图中可以看出，随着束流能量增加，杂质同位素的种类和产额也相应增加。因此，束流能量的选取还需要考虑杂质核素对目标医用同位素纯度及分离过程等的影响。如α束打钍靶产生²¹¹At，当α能量高于29MeV时，产生了²¹⁰At和²¹⁰Po(²¹⁰At100%衰变为²¹⁰Po)，这和实验测量结果^[8]一致。由于²¹⁰Po具有剧毒性，生产²¹¹At时，α束的能量要低于29MeV。

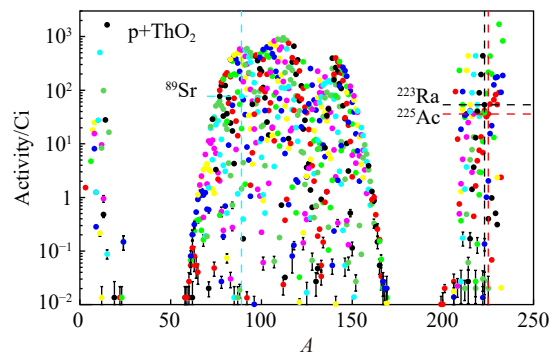


图7 (在线彩图) 质子束打钍靶产生碎片的质量产额分布

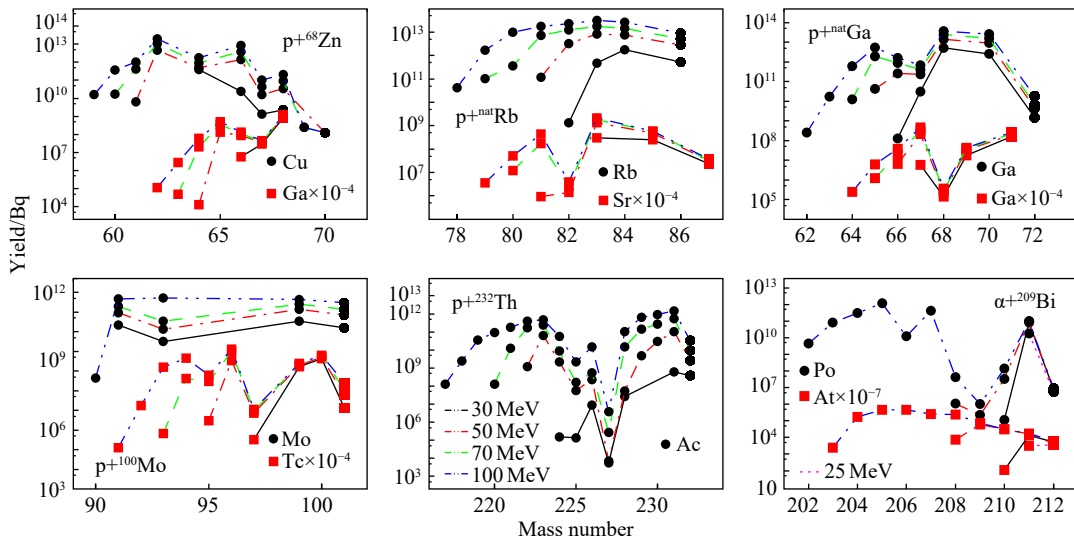


图8 (在线彩图) 束流打同位素靶产生的主要杂质核素的产额与与束流能量的关系

3 结论

本文利用FLUKA程序研究了质子加速器生产医用放射性同位素的产额与同位素靶和加速器关键参数之间的关系，研究内容包括：医用放射性同位素产额与入射束流能量、辐照时间、冷却时间及靶厚的关系，以及医用同位素生产中的主要杂质核素与束流能量的关系。计

算结果显示，医用放射性同位素产额随束流能量的增加，产额增加的趋势逐渐降低，入射束流能量的选取与目标医用同位素的核反应激发函数密切相关；产额随辐照时间的增长而增加，随辐照后冷却时间的增长而降低，变化情况主要取决于目标医用同位素的半衰期，加速器辐照时间的选取与半衰期相关，冷却时间决定于后续的分

效射程内产生医用放射性同位素，选取合适的靶厚可以优化目标医用同位素的比活度值等；此外，束流能量越高产生的杂质核素种类及产额也相应增加，选取合适的辐照能区、辐照时间及冷却时间等，可以降低后续目标医用同位素分离纯化等工作的复杂程度。本文通过FLUKA的计算初步为加速器生产医用同位素提供了重要的依据。

参考文献：

- [1] LI Ziwei, HAN Yuncheng, WANG Xiaoyu, et al. *Nuclear Physics Review*, 2019, 36(2): 170. (in Chinese)
(李紫微, 韩运成, 王晓彧, 等. *原子核物理评论*, 2019, 36(2): 170.)
- [2] ZHUANG Youxiang, CAI Dunjiu, ZHAO Zhixiang. *Trends in Nuclear Physics*, 1996, 13(1): 36. (in Chinese)
(庄友祥, 蔡敦九, 赵志祥. *核物理动态*, 1996, 13(1): 36.)
- [3] GAO Feng, LIN Li, LIU Yuhao, et al. *Journal of Isotopes*, 2016, 29(2): 116. (in Chinese)
(高峰, 林力, 刘宇昊, 等. *同位素*, 2016, 29(2): 116.)
- [4] ZHUIKOV B L. *Applied Radiation and Isotopes*, 2014, 84: 48.
- [5] BATTISTONI G, MURARO S, SALA P R, et al. *AIP Conference Proceeding*, 2007, 896: 31.
- [6] BATTISTONI G, BOEHLER T, CERUTTI F, et al. *Ann. Nucl Energy*, 2015, 82: 10.
- [7] ESPOSITO J, VECCHI G, PUPILLO G, et al. *Science and Technology of Nuclear Installations*, 2013, 2013: 1.
- [8] HERMANNE A, TARKANYI F, TAKACS S, et al. *Applied Radiation and Isotopes*, 2005, 63: 1.

Study of Medical Radioisotopes Production by Accelerator Induced Reactions with FLUKA

HAN Rui¹, CHEN Zhiqiang^{1,2,†}, TIAN Guoyu¹, SHI Fudong¹, ZHANG Xin^{1,2}, LIU Bingyan^{1,2}, SUN Hui^{1,2}

(1. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;

2. School of Nuclear Science and Technology, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The medical radioisotopes $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{64,67}\text{Cu}$, $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$, $^{82}\text{Sr}/^{82}\text{Rb}$, ^{211}At , ^{225}Ac have been attracting a lot of attention in nuclear medicine. In this paper, the yields and product distributions of the above medical radioisotopes were studied with FLUKA code. The results show that the yield growth trend becomes slower with the increase of beam energy. The yield increased with the increase of irradiation time and decreased with the increase of cooling time. The change mainly depends on the half-life of the medical radioisotopes. The incident beam produces medical radioisotopes within the effective range in the isotope target. The reasonable target thickness can optimize the specific activity value of the medical radioisotopes. Moreover, the kinds and yields of impurity nuclides also increased with the increase of the beam energy. The reasonable irradiation energy and irradiation time can reduce the complexity of subsequent medical radioisotopes separation and purification. This work provides important information for the accelerator produced medical radioisotopes by FLUKA calculation.

Key words: medical radioisotopes; accelerator; yield; FLUKA

Received date: 14 Jan. 2020; Revised date: 27 May 2020

Foundation item: Joint Large-Scale Scientific Facility Funds of NSFC and CAS(U1832205); National Natural Science Foundation of China(11875298, 11605257)

† Corresponding author: CHEN Zhiqiang, E-mail: zqchen@impcas.ac.cn.