

$^{nat}\text{W}(p, xn)^{181-186}\text{Re}$ 反应的激发函数

李文新 何蔚瑜 尹端让 邱学军 钱 军 胡伟青

(中国科学院上海原子核研究所, 上海 201800)

使用叠靶技术测量了22.5 MeV的质子照射天然钨时生成 ^{181}Re 、 $^{182}\text{Re}^m$ 、 $^{182}\text{Re}^g$ 、 ^{183}Re 、 $^{184}\text{Re}^m$ 、 $^{184}\text{Re}^g$ 和 ^{186}Re 的激发函数。估算了 $^{186}\text{W}(p, n)^{186}\text{Re}$ 反应生产用于治疗放射性核素 ^{186}Re 的厚靶产额,并与 $^{186}\text{W}(d, 2n)^{186}\text{Re}$ 反应的有关数据进行了比较。

关键词 $^{nat}\text{W}(p, xn)^{181-186}\text{Re}$ 激发函数 ^{186}Re 的厚靶产额

近年来,新一代的放射性治疗药物 ^{153}Sm 、 ^{186}Re 、 ^{188}Re 和 ^{67}Cu 等,越来越受到核医学界的重视^[1]。这些核素的共同特征是半衰期为数天,除了发射 β 粒子外,还伴随发射与各类 γ 相机匹配的低能低强度 γ 光子,因而可在治疗的同时进行显像监察和辐射剂量估算。 ^{186}Re 是一个核性质十分理想的治疗核素,半衰期为3.78 d, β 粒子能量为1.07 MeV,伴随发射137 keV的 γ 光子(9.2%)。另外,Re的化学性质与临床诊断中使用最广泛的 $^{99}\text{Tc}^m$ 相似,因此可以预料, ^{186}Re 有着广阔的应用前景。文献[2,3]用反应堆通过中子俘获反应生产 ^{186}Re ,但得到的是有载体、比活度不太高的 ^{186}Re 制剂,用它标记的抗肿瘤单克隆抗体对放射免疫治疗的研究有一定的限制。为了探索用加速器生产无载体、高比活度的 ^{186}Re 的可能性,本工作用22.5 MeV的质子轰击天然W,测量包括 ^{186}Re 在内的5个Re同位素(A=181—186)共7个放射性核素的激发函数,并根据实验结果,估算 $^{186}\text{W}(p, n)^{186}\text{Re}$ 反应生产 ^{186}Re 的厚靶产额。

1 实验部分

照射在上海原子核研究所可变量回旋加速器上进行,引出的质子能量为22.5 MeV。叠靶由每片厚度约31 mg/cm²的11片天然W片组成,W片之间插入适当厚度的Al降能片。厚度为8.8 mg/cm²的Cu箔置于束流上向,用作束流强度的监察箔。质子束的强度约0.3 μA ,照射2 h。照射结束约20 h后,使用已刻度过效率的HPGe探测器测量W片和Cu监察箔的 γ 放射性,样品至探测器表面的距离为8—47.5 cm不等。测量持续2个星期。 γ 射线能谱在CANBERRA S-80多道分析器上分析。根据特征 γ 射线能量,半衰期和 γ 射线相对发射强度指定核反应产生的放射性核素。22.5 MeV的质子在Cu监察箔中的能量衰减为0.13 MeV,在Cu箔中的平均能量为22.4 MeV。因此,监察反应 $^{63}\text{Cu}(p, 2n)^{62}\text{Zn}$ 的截面在此能量下取作61.3

收稿日期:1995-03-04 收到修改稿日期:1996-01-16

$\times 10^{-31} \text{m}^2$ ^[4]。质子穿过 Cu、W 和 Al 箔后在每个 W 片中的平均能量按质子的射程能量表计算。计算得到质子在 W 片中的能散在高能和低能部分分别为 $\pm 0.2 \text{ MeV}$ 和 $\pm 0.3 \text{ MeV}$ 。照射过程中束流强度基本稳定,因此,计算截面时假定束流强度为常数。计算截面时使用的有关核参数列入表1^[5]。

表1 截面计算中使用的有关核参数

| 核素 | 半衰期 | γ 射线能量 | | 核素 | 半衰期 | γ 射线能量 | |
|--------------------------------|-------|--------------------------------|-------|--------------------------------|-------|--------------------------------|-------|
| | | /keV | /% | | | /keV | /% |
| ⁶² Zn | 9.26h | 548.4 | 15.2 | ¹⁸³ Re | 70.0d | 162.3 | 23.3 |
| | | 596.6 | 25.7 | | | ¹⁸⁴ Re ^m | 165d |
| ¹⁸¹ Re | 20h | 365.5 | 56.4 | 216.5 | 9.64 | | |
| | | ¹⁸² Re ^m | 12.7h | 1121.4 | 31.9 | | |
| ¹⁸² Re ^g | 2.67d | | | 1221.5 | 25.1 | ¹⁸⁴ Re ^g | 38.0d |
| | | 169.2 | 12.2 | 894.3 | 15.6 | | |
| | | 351.1 | 11.2 | 903.3 | 37.8 | | |
| | | 1076.2 | 11.4 | 137.2 | 9.20 | | |
| | | | | ¹⁸⁶ Re ^g | 3.78d | | |

2 实验结果

实验中使用了由多种同位素组成的天然金属 W 靶(0.13%¹⁸⁰W、26.3%¹⁸²W、14.3%¹⁸³W、30.7%¹⁸⁴W 和 28.6%¹⁸⁶W)。在质子轰击后生成了¹⁸¹Re、¹⁸²Re^m、¹⁸²Re^g、¹⁸³Re、¹⁸⁴Re^m、¹⁸⁴Re^g 和¹⁸⁶Re 5个同位素共7个放射性核素。由于¹⁸⁴Re^m 核寿命长、 γ 射线强度较低,只测定了质子能量在20MeV 左右的少数几个截面值。在照射和测量期间¹⁸⁴Re^m 的同质异能跃迁对基态¹⁸⁴Re^g 放射性的贡献未作修正,因此,得到的截面是 m 态的部分截面和 g 态截面之和。本工作测定的 Re 的放射性核素的截面值(以天然 W 元素计)列入表2。大部分截面值的不确定度在7%—10% 范围内。不确定度主要来源于探测器的效率、计数的统计误差和 γ 谱的分析。靶厚的误差可忽略不计,但是靶片的不均匀性和用 Cu 监察箔法测定束流强度的误差未包括在内。¹⁸⁶Re 的放射性活度比其他核素低得多,因而引起了较大的统计误差和 γ 谱的分析误差,尤其在较高的轰击能量下,不确定度高达35%左右。

表2 实验测定的 Re 同位素的生成截面

 10^{-31}m^2

| E/MeV | ¹⁸¹ Re | ¹⁸² Re ^m | ¹⁸² Re ^g | ¹⁸³ Re | ¹⁸⁴ Re ^m | ¹⁸⁴ Re ^g | ¹⁸⁶ Re |
|-------|-------------------|--------------------------------|--------------------------------|-------------------|--------------------------------|--------------------------------|-------------------|
| 7.5 | | 10.8 | 1.09 | 6.0 | | 5.97 | 8.27 |
| 9.2 | 0.24 | 46.7 | 4.27 | 35.9 | | 40.6 | 11.9 |
| 10.8 | 13.6 | 99.5 | 12.4 | 97.4 | | 28.9 | 7.49 |
| 12.3 | 89.4 | 121 | 19.1 | 156 | | 19.4 | 7.41 |
| 13.8 | 137 | 109 | 22.0 | 128 | | 12.5 | 3.86 |
| 14.8 | 172 | 103 | 22.8 | 143 | | 9.55 | 4.15 |
| 16.4 | 219 | 116 | 31.3 | 186 | | 28.0 | 3.39 |
| 17.8 | 256 | 118 | 37.0 | 210 | | 108 | 3.27 |
| 19.3 | 294 | 140 | 47.8 | 182 | 7.7 | 187 | |
| 20.8 | 314 | 172 | 67.0 | 96.2 | 17.3 | 230 | |
| 22.2 | 308 | 207 | 85.0 | 89.8 | 20.5 | 264 | |

3 讨论

质子轰击天然钨靶时生成 ^{181}Re 、 $^{182}\text{Re}^m$ 、 $^{182}\text{Re}^g$ 、 ^{183}Re 、 $^{184}\text{Re}^g$ 和 ^{186}Re 的激发函数示于图1。从图1可见， $^{182}\text{Re}^m$ 、 $^{182}\text{Re}^g$ 、 ^{183}Re 和 $^{184}\text{Re}^g$ 的激发函数存在明显的结构。因为用天然 W 作靶材料时，Re 的同位素可以同时通过不同的 W 同位素的(p,n)和(p,2n)反应生成。例如， ^{182}Re 可以通过 $^{182}\text{W}(p,n)^{182}\text{Re}$ 和 $^{183}\text{W}(p,2n)^{182}\text{Re}$ 反应生成。这些反应的阈能和激发曲线峰位的不同造成了实验测定的激发函数上的结构。在本工作测量的能区， ^{181}Re 主要由 $^{182}\text{W}(p,2n)$ 反应生成。特别是 ^{186}Re ，只能由 W 的最丰中子的稳定同位素 ^{186}W 通过 $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ 反应生成。因此，实验测定的 ^{181}Re 和 ^{186}Re 的激发函数具有(p,2n)和(p,n)反应所具有的典型形状。

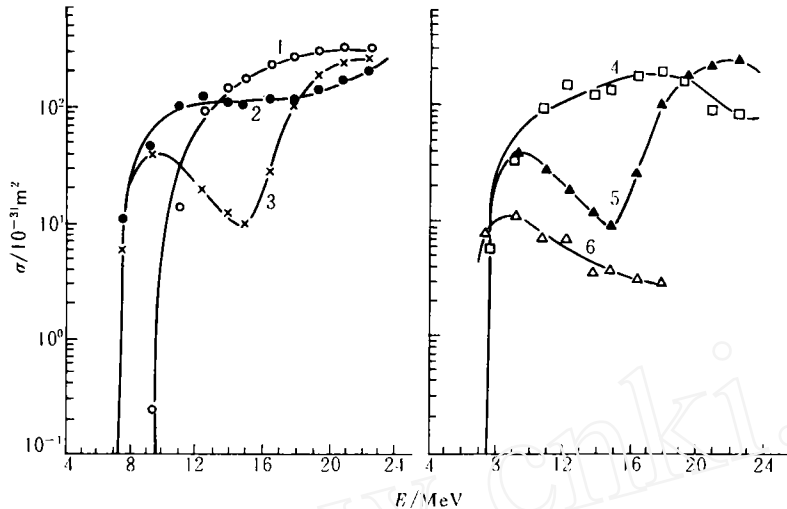


图 1 质子轰击天然 W 时生成 Re 同位素的激发函数

1—— ^{181}Re , 2—— $^{182}\text{Re}^m$, 3—— $^{182}\text{Re}^g$, 4—— ^{183}Re , 5—— $^{184}\text{Re}^g$, 6—— ^{186}Re

正因为 ^{186}Re 只能由 ^{186}W 生成，因此对 ^{186}W 的天然丰度28.6%进行修正后可以得到 $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ 反应的激发函数，其截面最大值为 $42 \times 10^{-31} \text{m}^2$ ，对应的质子能量约9.2 MeV。实验测量得到的 $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ 反应截面比已知的许多(p,n)反应截面低得多，原因有待探讨。

根据实验结果推算的 $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ 反应的激发函数，并假定用18 MeV的质子轰击750 mg/cm^2 厚的浓缩同位素 ^{186}W 金属靶，对应的质子有效能量范围为6—18 MeV，计算得到的厚靶产额为2.6 $\text{MBq}/\mu\text{A}\cdot\text{h}$ 。陶振兰等^[6]曾用叠靶技术测量了氘和天然钨相互作用时生成 Re 的各个同位素的激发函数，使用类似的方法得到了 $^{186}\text{W}(d,2n)^{186}\text{Re}$ 反应截面最大值为 $(434 \pm 26) \times 10^{-31} \text{m}^2$ 。Nassiff 等^[7]得到的 $^{186}\text{W}(d,2n)^{186}\text{Re}$ 反应的最高截面为 $622 \times 10^{-31} \text{m}^2$ 。因此，用 $^{186}\text{W}(d,2n)^{186}\text{Re}$ 反应生产 ^{186}Re 的产额要比用 $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ 反应高10倍以上。由此可见，就产额而言，生产 ^{186}Re 合适的反应是 $^{186}\text{W}(d,2n)^{186}\text{Re}$ 。但是由于存在很强的次级中子诱发反应，可能会影响到用这个方法生产 ^{186}Re 的放射性纯度。另一方面，上海原子核研究所的可变能量回旋加速器加速的 d 束最大流强约15 μA ，而从比利时 IBA 公司引进的 Cyclone 30 加速器能提供质子的最大流强为400 μA 。如果用400 μA 的质子束轰击 ^{186}W 12 h，在上述条件下(不考虑束

流增强和照射时间延长造成的产物损失),可以生产12 GBq的 ^{186}Re 。由此可见,在Cyclone 30回旋加速器上,用高强度质子束通过 $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ 反应生产放射性治疗药物 ^{186}Re 制剂是可行的。

致谢:陈林兴和回旋加速器全体运行人员提供了非常好的质子束照射条件。姚志铨提供了供照射用的金属钨片,王功庆在计算质子束的能损时给予了热情的帮助,谨表示衷心的感谢。

参 考 文 献

- 1 Vera-Rulz Hernan. Radiopharmaceuticals as Therapeutic Agents in Medical Care and Treatment. IAEA Bulletin, Features, 1993, (1): 24.
- 2 Deng Houfu, Tan Tianzhi, Luo Shunzhong, et al. A New Radiopharmaceutical for Bone Tumor Therapy—the Experimental Study of ^{186}Re -HEDP. J Labelled Compd Radiopharm, 1994, 35: 76.
- 3 Schubiger PA, Cahn RM, Alberto RA, et al. Production of ^{186}Re With High Specific Activity by the Szilard—Chalmers Reaction. J Labelled Compd Radiopharm. 1994, 35: 215.
- 4 Grutter A. Excitation Function for Radioactive Isotopes Produced by Proton Bombardment of Cu and Al in the Energy Range of 16 to 70 MeV. Nucl Phys, 1982, A383: 98.
- 5 Reus U, Westmeier W. Catalog of Gamma Rays From Radioactive Decay. At Data Nucl Data Tables. 1983, 29 (2): 193—406.
- 6 陶振兰,朱福英,裘惠源. $^{182-186}\text{W}(d,2n)^{182-186}\text{Re}$ 和 $^{186}\text{W}(d,p)^{187}\text{W}$ 反应的激发函数. 原子核物理, 1981, 3 (3): 242.
- 7 Nassiff SJ, Muzel H. Cross Section for the Reactions $^{66}\text{Zn}(d,n)^{67}\text{Ga}$, $^{52}\text{Cr}(d,2n)^{52}\text{Mn}^g$ and $^{186}\text{W}(d,2n)^{186}\text{Re}$. Radiochim Acta, 1973, 19: 97.

EXCITATION FUNCTIONS FOR $^{nat}\text{W}(p, xn)^{181-186}\text{Re}$ REACTIONS

Li Wenxin He Weiyu Yin Duanzhi Qiu Xuejun Qian Jun Hu Weiqing

(Shanghai Institute of Nuclear Research, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

ABSTRACT

The excitation functions are determined for the products of ^{181}Re , $^{182}\text{Re}^m$, $^{182}\text{Re}^g$, ^{183}Re , $^{184}\text{Re}^m$, $^{184}\text{Re}^g$ and ^{186}Re produced from proton-induced reactions on natural tungsten at energies up to 22.5 MeV by stacked-foil technique. The thick target yield of ^{186}Re is estimated via $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ reaction and is compared with that of $^{186}\text{W}(d,2n)^{186}\text{Re}$ reaction reported elsewhere.

Key words $^{nat}\text{W}(p, xn)^{181-186}\text{Re}$ Excitation function Yield of ^{186}Re