

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

Р6-85-803

Н.Г.Зайцева, О.Кнотек, Ким Сев Хан, П.Микед,
В.И.Соболев, В.А.Халкин, В.А.Конов,*
Л.М.Попиненкова*

ПОЛУЧЕНИЕ ЙОДА-123
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ЙОДИСТОГО НАТРИЯ
ПРОТОНАМИ С ЭНЕРГИЕЙ 100 МэВ

Направлено в журнал "Радиохимия"
и на конференцию "Методы получения йода-123
и радиофармпрепаратов на его основе",
Москва, 1986

* Институт физики высоких энергий, Серпухов

1985

ВВЕДЕНИЕ

К числу радионуклидов, получаемых на ускорителях и наиболее широко распространенных в ядерной медицине, относятся ^{123}I благодаря своим ядерно-физическим, химическим и биологическим свойствам^{/1/}. Использование ^{123}I в ядерной медицине началось в 1965 году^{/1/}, и к настоящему времени в мире налажено его производство в количестве около 750 Ки /год^{/2/}. О важности этого радионуклида свидетельствуют многочисленные публикации и симпозиумы, специально посвященные этому нуклиду^{/3/}.

Иод-123 получается в ядерных реакциях, в результате которых он образуется непосредственно, например, $\text{Te}(p, \alpha n)\text{I}$, или через своего предшественника ^{123}Xe $\xrightarrow{\beta^+, \text{ЭЭ}}$ ^{123}I . Оба метода, прямой и генераторный, стали обычными способами его производства^{/2/} с хорошо разработанной технологией получения высокоактивных препаратов^{/4-7/}.

Для прямого получения ^{123}I используются преимущественно мишени из обогащенного ^{124}Te , реже из ^{122}Te или ^{123}Te , и совсем редко — мишени из сурьмы. Теллуровые мишени облучаются протонами с энергией до ~ 28 МэВ на низкоэнергетических сильноточных ускорителях. Радионуклидная чистота ^{123}I , получаемого таким способом, не превышает 96%, основное нежелательное загрязнение (до $\sim 1\%$) дает ^{124}I ($T_{1/2} = 4,14$ дн., $E_{\gamma} = 603$ кэВ). Это обстоятельство, а также высокая стоимость обогащенных мишеней делают генераторный метод получения ^{123}I из ^{123}Xe более предпочтительным. Главное его преимущество заключается в том, что ^{123}I характеризуется высокой радионуклидной чистотой ($\sim 99,5\%$), загрязнение ^{125}I не превышает $\sim 0,2\%$. Препараты генераторного ^{123}I пригодны для широкого использования в ядерной медицине при диагностике заболеваний различных органов, в то время как ^{123}I , получаемый прямым методом, пригоден только для диагностики заболеваний щитовидной железы^{/8/}. Таким образом, высокая радионуклидная чистота препарата, дешевый материал мишени (Иод или его соединения), возможность выделение радиоактивного ксенона без специальных химических операций, а при необходимости он-лайн с облучением мишени — все это характеризует преимущества генераторного метода получения ^{123}I из ^{123}Xe .

Наиболее распространенная реакция получения ^{123}I генераторным методом $^{127}\text{I}(\rho, 5n)^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$ требует протонного пучка с энергией выше 55 МэВ. Для получения ^{123}I с необходимой радионуклидной чистотой и высоким выходом выбирается энергетическое окно в интервале 66–46 МэВ. Нижняя граница энергии определяется нежелательным с уменьшением энергии возрастанием выхода ^{125}Xe в реакции $^{127}\text{I}(\rho, 3n)^{125}\text{Xe} \rightarrow ^{125}\text{I}$, а верхняя — реакцией $^{127}\text{I}(\rho, 7n)^{121}\text{Xe} \rightarrow ^{121}\text{I} \rightarrow ^{121}\text{Te}$.

Функции возбуждения реакций $(\rho, 3n)$ и $(\rho, 5n)$ на ^{127}I достаточно хорошо изучены экспериментально^{/9-11/} и оценены расчетным методом^{/12/} при энергии протонов ниже 85 МэВ; при более высоких энергиях, до 160 МэВ, известны результаты двух работ^{/13,14/}. Анализируя их, можно было ожидать, что использование протонов с начальной энергией $E_p = 100$ МэВ позволит повысить выход ^{123}I за счет увеличения толщины мишени (100+46 МэВ вместо 66+46 МэВ). При этом можно было предполагать, что радионуклидная чистота ^{123}I не ухудшится, поскольку примесь ^{125}I должна остаться на прежнем уровне ($\sim 0,2\%$), судя по величине сечений образования ^{125}Xe ^{/13,14/}. Что касается примеси ^{121}Te , то йод очищается от нее при условии поглощения радиоксенона в ловушку, заполненной Al_2O_3 ^{/15/}.

Необходимо также отметить, что использование протонов с энергией 100 МэВ в определенной мере облегчает решение вопросов, связанных с конструкцией мишени, позволяющей собирать радиоксенон во время облучения из расплавленного йодиде натрия.

Целью настоящей работы было изучение условий получения ^{123}I на линейном ускорителе ЛУ-100 в Институте физики высоких энергий (Протвино). Для этого измерялись функции возбуждения реакций $(\rho, 3n)$ и $(\rho, 5n)$ при облучении йодистого натрия протонами с начальной энергией 100 МэВ, определялись выход и радионуклидная чистота ^{123}I , получаемого при выделении ^{123}Xe в режиме он-лайн с облучением.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для определения сечений образования ^{123}Xe и ^{125}Xe облучалась мишень, представляющая собой оборуку из нескольких алюминиевых фольг, толщиной $0,028 \text{ г/см}^2$ каждая, и 25 таблеток опрессованного порошка йодистого натрия. Каждая таблетка ($0,45\text{--}0,55 \text{ г/см}^2$) упаковывалась в герметическую оболочку из полиэтиленовой пленки. Общая толщина Na I была $12 \pm 1 \text{ г/см}^2$.

Мишени облучались выведенным пучком протонов с энергией 100 МэВ и интенсивностью $\sim 36 \text{ нА}$ в течение 1 часа. Для расчета энергетических

потерь протонов в Al и в таблетках Na I использовались табличные данные^{/16/}. Сечение мониторинг реакции $^{27}\text{Al}(p, 3pn)^{24}\text{Na}$ хорошо известно^{/17/}, и в расчетах оно принималось равным 10 мб.

Активность ^{123}Xe и ^{125}Xe в каждом образце определялась по интенсивности гамма-квантов, сопровождающих распад этих нуклидов (табл. I). Измерения и обработка результатов проводилась с помощью гамма-спектрометра (Ge(Li) - детектор, 4096-канальный анализатор) и программы ЭТАП на ЭВМ ЕС-1010^{/18/}. Величины площадей под соответствующими гамма-пиками, приведенные к концу облучения с учетом данных интенсивности на распад, эффективности регистрации гамма-квантов детектором, времени и геометрии измерения, самопоглощения в образце, использовались для расчета сечений образования ^{123}Xe и ^{125}Xe и выходов ^{123}I и ^{125}I .

Таблица I

Энергии гамма-квантов и их относительные интенсивности^{/23/}, использованные при определении сечений образования изотопов ксенона

Изотоп	$T_{1/2}$, час	E_{γ} , кэВ	% на распад
^{123}Xe	2,08	178	48,6
^{125}Xe	16,9	188	54,9
		243	28,8

С целью проверки он-лайн процесса получения ^{123}I из расплава Na I при облучении на ДУ-100 была разработана конструкция мишени, аналогичная по принципу устройства и работы описанной нами ранее^{/19/}. На рис. 1 показана схема контейнера для расплава Na I и расположенные слои конструкционных материалов, через которые проходит протонный пучок, прежде, чем он достигает Na I. По расчетам энергетические потери в них составляют около 6,5-7 МэВ, а после расплава Na I (~9,6 г/см²) энергия протонов падает до 48-49 МэВ.

На рис. 2 представлена общая схема выделения и сбора радиоксенона из расплава Na I (680±10°C), подробное описание которой приведено ранее^{/19/}. Расстояние от мишени до ловушек, в которых улавливался радиоксенон, было около 30 метров. Три независимых линии ловушек позволяли в одном сеансе работы ускорителя (8 часов) последовательно проводить сбор радиоксенона и накопление йода. Наблюдение за параметрами работы установки (температура, скорость газа, показания активности, положение пучка) осуществлялось с помощью телевизионных камер. В процессе работы установки было определено время поступления радиоксенона из расплава с массой ~130 г в охлажденные жидким азотом ловушки с Al₂O₃, а также выход и радионуклидная чистота ^{123}I .

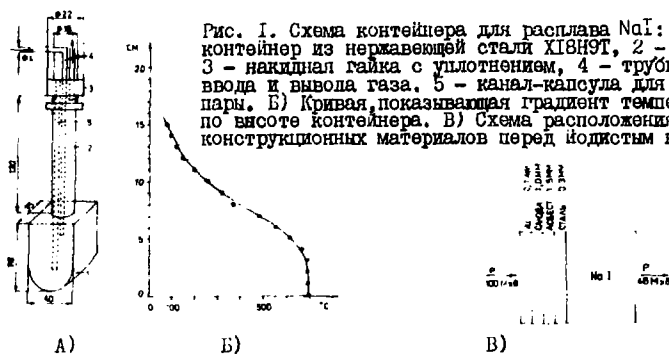


Рис. 1. Схема контейнера для расплава NaI: А) 1 - контейнер из нержавеющей стали Х18Н9Т, 2 - штуцер, 3 - накидная гайка с уплотнением, 4 - трубки для ввода и вывода газа, 5 - канал-капсула для термопары. Б) Кривая, показывающая градиент температуры по высоте контейнера. В) Схема расположения слоев конструкционных материалов перед йодистым натрием.

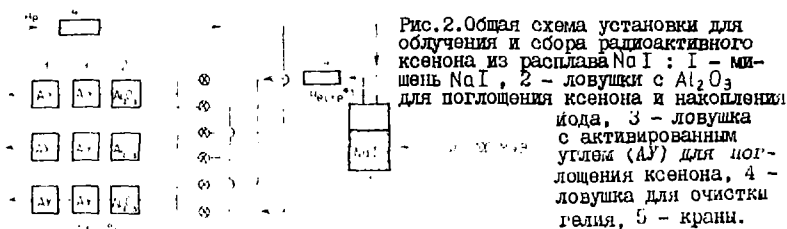


Рис. 2. Общая схема установки для облучения и сбора радиоактивного ксенона из расплава NaI: 1 - мишень NaI, 2 - ловушки с Al₂O₃ для поглощения ксенона и накопления йода, 3 - ловушка с активированным углем (АУ) для поглощения ксенона, 4 - ловушка для очистки галлия, 5 - краны.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 3 показаны кривые функций возбуждения реакции $^{127}\text{I}(p, 5n)^{123}\text{Xe}$ и $^{127}\text{I}(p, 3n)^{125}\text{Xe}$, полученные при облучении йода протонами с энергией 100 МэВ. Точки на рисунке представляют среднеарифметические величины двух-четырёх определений. Возможные отклонения по энергии составляли $\pm 0,5$ МэВ и на рисунке не указаны. Приближённо оценённая систематическая ошибка в определении сечения, обусловленная рядом факторов, в том числе неточностью хода кривой относительной эффективности регистрации гамма-лучей, составила $\pm 20\%$. Для сравнения полученных результатов с известными в литературе данными на рисунке приведены кривые по результатам работ [13, 14]. Кроме того, в табл. 2 и 3 приведены также результаты других работ. Видно, что наши результаты и известные литературные данные согласуются достаточно хорошо.

Исходя из полученных величин сечения образования ^{123}Xe и ^{125}Xe были рассчитаны выходы ^{123}I и ^{125}I при следующих

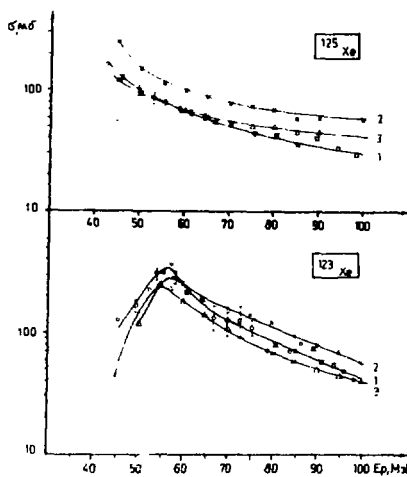


Рис. 3. Экспериментальные функции возбуждения реакций $^{127}\text{I}(p,5n)^{123}\text{Xe}$ и $^{127}\text{I}(p,3n)^{125}\text{Xe}$: 1 - наши результаты - о -; 2 - работа /13/ -x-; 3 - работа /14/ -Δ-.

условиях эксперимента: 2 часа облучение, 6 часов накопление. В табл. 4 приведены выходы этих нуклидов в толстых мишенях. Как видно, за счет использования более широкого энергетического окна при облучении йода протонами с энергией 100 МэВ (100-48 МэВ) можно увеличить выход ^{123}I примерно на 30%, при этом загрязнение ^{125}I остается на допустимом уровне ($\sim 0,14\%$).

Выше упоминалось о том, что при облучении йода протонами с энергией 100 МэВ необходимо иметь в виду образование ^{121}Xe в реакции: $^{127}\text{I}(p,7n)^{121}\text{Xe}$ и соответственно продуктов его распада ^{121}I и ^{121}Te . Максимальное сечение образования ^{121}Xe при $E_p = 82$ МэВ по литературным данным равно $75 \text{ мб} /^{13/}$ и $50 \text{ мб} /^{14/}$. Очистка препарата ^{123}I от загрязнений ^{121}Te достигается в процессе удаления йода из колонки с Al_2O_3 , на которой происходило его образование из ксенона: йод вымывается водой, а теллур остается на $\text{Al}_2\text{O}_3 /^{15,21/}$. Измерения гамма-спектра полученного водного раствора радиоiodа показали отсутствие примеси ^{121}Te (гамма-линия с энергией 571 кэВ в спектре не обнаружена).

Измерения активности ^{123}I , полученного генераторным методом в режиме он-лайн, показали хорошее согласие экспериментальных результатов и величин, рассчитанных по данным функции возбуждения реакции $^{127}\text{I}(p,5n)^{123}\text{Xe}$. При различных временах облучения мишени и накопления йода из радиоксенона: 0,5/2,5; 0,5/9; 1/4 и 2/5 часов, соответственно, было получено $90 \pm 5\%$ от теоретического выхода ^{123}I . Эти результаты, а также экспериментальная кривая, показывающая активность радиоксенона на участке транспортной трубки при прохождении газа во время облучения мишени и после выключения ускорителя (рис.4), указывают на относительно короткое время полувыделения радиоактивного ксенона (≈ 3 мин) из слоя расплава NaI высотой ~ 40 мм и общей массой ~ 130 г при температуре $680 \pm 10^\circ\text{C}$ ($d_{\text{NaI}} = 2,7 \text{ г/см}^3 /^{21/}$).

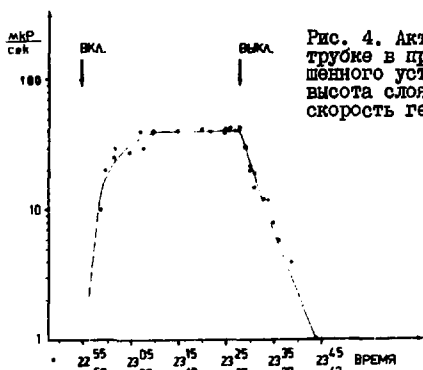


Рис. 4. Активность газа в транспортной трубке в процессе поступления его из мишенного устройства в ловушку ($\text{NaI} \sim 130 \text{ г}$, высота слоя расплава $\sim 40 \text{ мм}$, $T = 680 \pm 10^\circ \text{C}$, скорость гелия $100 \text{ см}^3/\text{мин}$).

Исходя из результатов табл. 4 оценка количества ^{123}I , которое может быть получено на МУ-100 при средней интенсивности протонов 2 мкА, показывает, что активность препарата ^{123}I за 2 часа облучения и 6 часов накопления составит по расчету

~ 110 мкИ. Если же проводить последовательно, в одном сеансе работы ускорителя 2-3 цикла "облучение-накопление"/ ^{19}F , то активность ^{123}I можно увеличить до 200-300 мкИ.

Таблица 2
Экспериментальные сечения образования ^{123}Xe при облучении йода протонами (мб)

E_p МэВ	1975 /9/	1976 /10/	1977 /11/	1978 /13/	1979 /14/	1978 ^ж 1981 /12, 22/	1985 /Наша/
45	90	50	37 ± 2	45		150	100
50		275	147 ± 10	150	120	390	180
55	480	365	269 ± 17	260	250	400	316
57	475				235		350
58		375		290			
60	380	325	220 ± 14	255	180	280	250
65		220	135 ± 13	190	140	175	175
70	295	190	121 ± 12	160	110	120	
75			100 ± 13	140			130
80				120	70	140	85
85			71 ± 9	95	60		70
90				80	50		60
95				70	45		50
100				60	40		40

Результаты взяты по кривым, за исключением табличных данных 1977 г. /11/.

^жРасчетные данные.

Таблица 3
Экспериментальные сечения образования ^{125}Xe при облучении йода
протонами (мб)

E_p , МэВ	1975 /9/	1976 /10/	1977 /11/	1978 /13/	1979 /14/	1978* /12/	1985 /Наша/
45	300	140	245±13	250	120	120	135
50		120	110±7	150	95	105	103
55		100	114±8	115	80	100	80
60	130	80	76±6	100	75	95	70
65	100	65	90±10	90	60	90	60
70			79±9	80	55	90	50
75				75	50		45
80				70	50		40
85			43±7	60	45		40
90				60	45		35
100				60	40		30

Результаты взяты по кривым, за исключением табличных данных 1977 года /11/.

*Расчетные данные.

Таблица 4
Выход ^{123}I и ^{125}I в толстых мишенях йодистого натрия (мКи/мкА·ч, на 6 часов после конца 2-часового облучения)

E_p , МэВ	^{123}I	^{125}I	$^{125}\text{I} / ^{123}\text{I}$	Работа
100-48	27	0,038	0,0014	Наша, 1985
66-46	21	0,021	0,001	/10/, 1976
"	20		0,001	/5/, 1981
"	19-20		0,001	/24/, 1984
"	20		0,0009	/12/, 1978*

*Расчетные данные.

В заключение авторы выражают большую благодарность Наумову А.А., Грозову К.Я. и Тешлякову В.А. за поддержку и интерес к работе, персоналу ускорителя ДУ-100 за проведение облучений, Бруданину В.Б. и Новгородову А.Ф. за обеспечение работы измерительного центра, Кузнецовой М.Я. за полезные советы, Халкину А.Д. за проведенные расчеты, Реш А. за помощь в работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. Myers W.G. Recent Advances in Nuclear Medicine, (Ed. Lawrence J.N.), N.Y., 1974.

2. Cyclotron Facilities with Radionuclide Production Programmes in Member States, IAEA, Jan., 1983, Vienna.
3. Qaim S.M., Stöcklin G., *Radiochimica Acta*, 1983, 34, p. 25.
4. Michael H., Rosezin H., Apelt H., Blessing G., Knieper J., Qaim S.M. *Int.J.Appl.Rad.Isotopes*, 1981, 32, p. 581.
5. Jungerman J.A., Lagunas-Solar M.C., *J.Radioanalyt.Chem.* 1981, 65, p. 31.
6. Vincent J.S., Dougan A.H., Lyster D.L., Blue J.W. *J.Radioanal. Chem.*, 1981, 65, p. 17.
7. Legoux Y., Cleur M., Goutherand R., Drouet J., Crouzel C., Syrota A. *Int.J.Appl.Rad.Isotopes*, 1985, 36, p. 63.
8. Lagunas-Solar M.C. *IEEE Trans.Nucl.Sci.*, 1983, NS-30, p. 1805.
9. Wilkins S.R., Shimose S.T., Hines H.H., Jungerman J.A., Hegedus F., De Nardo G.L., *Int.J.Appl.Rad.Isotopes*, 1975, 26, p. 279.
10. Paans A.E.J., Vaulburg W., Van Herk G., Woldring M.G. *Int.J.Appl.Rad.Isotopes*, 1976, 27, p. 465.
11. Dikšić M., Yaffe L. *J.Inorg.Nucl.Chem.*, 1977, 29, p. 1299
12. Grabmayr F., Nowotny R. *Int.J.Appl.Rad.Isotopes*, 1978, 29, p. 261.
13. Syme D.E., Wood E., Blair I.M., Kew S., Perry M., Couper P. *Int.J.Appl.Rad.Isotopes*, 1978, 29, p. 29.
14. Lundqvist H., Malmberg B., Långström R., Suparb na Chienmai, *Int.J.Appl.Rad.Isotopes*, 1979, 30, p. 39.
15. Алексеев Е.Г., Волков А.А., Зайцев В.И., Золотов А.М., Комаров Е.И., Тихонов В.И. *Препринт ДИАН № 332, Л., 1978.*
16. Janni J.P., *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1982, 27, Part 1., p. 322; Part II, p.348.
17. Tobailem J., Lassus St.-Genies, Leveque L. *CEA-N-1466(1), Sac 1nu, 1971.*
18. Гопыч И.М. и др. В кн.: "Материалы совещания по программированию и математическим методам решения физических задач", ОИИИ, ДЦО, ИИ-И1261, Дусна, 1978, с. 330.
19. Зайцева Н.Г., Knotek O., Соболев В.И., Далекин В.А., Гонс З. *Препринт ОИИИ, Г6-81-178, Дусна, 1981.*
20. Adilbish M., Chumin V.G., Khaikin V.A., Knotek O., Kuznetsova M.Ja., Norzhev Yu.V., Pominukh V.I., Zaitseva N.G. *Int.J.Appl. Rad.Isotopes*, 1980, 31, p. 163.
21. Blander M. *Molten Salt Chemistry*, N.Y., L., Sydney, 1964, p.568
22. Nowotny R. *Int.J.Appl.Rad.Isotopes*, 1981, 32, p. 73.
23. Reus U., Westmeier W. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1983, 29, II
24. Weinreich R., Huszar I., Jegge J., Willax H., Reist H.W., Oehninger H. *Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds*, IAEA, Vienna, 1985, p. 55.

Рукопись поступила в издательский отдел
12 ноября 1985 года.

Зайцева Н.Г. и др.

P6-85-803

Получение йода-123 при облучении йодистого натрия протонами с энергией 100 МэВ

Изучены условия получения йода-123 на линейном ускорителе ЛУ-100. Измерены функции возбуждения реакций ($p, 3n$) и ($p, 5n$) при облучении йодистого натрия протонами с начальной энергией 100 МэВ. Определены выход и радионуклидная чистота йода-123, получаемого из ксенона-123, выделенного из мишени в режиме он-лайн с облучением. Как показали экспериментальные данные, выход йода-123 в интервале энергии протонов 100-48 МэВ был больше примерно на 30% по сравнению с результатами, полученными для йода-123 в интервале 66-46 МэВ. Загрязнения йода-125 составляли 0,14% /через 6 ч после окончания двухчасового облучения/.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1985

Перевод О.С.Виноградовой

Zaitseva N.G. et al.

P6-85-803

Iodine-123 Production by Irradiation of Sodium Iodine with 100 MeV Protons

The conditions of the iodine-123 production on the LU-100 linear accelerator were studied. The excitation functions of the ($p, 3n$) and ($p, 5n$) reactions at the irradiation of sodium iodine with 100 MeV protons have been measured. The yield and radionuclide purity of iodine-123 produced via xenon-123 separated from the target in on-line regime have been determined. The experimental results indicated that iodine-123 yield was by more than 30% over the 100-48 MeV proton energy range than those obtained for 66-46 MeV range. The contamination of iodine-125 was as high as 0.14% (EOB + 6 h).

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1985

10 коп.

Редактор М.И.Зарубина.

Макет Р.Д.Фоминой.

Подписано в печать 22.11.85.

Формат 60x90/16. Офсетная печать. Уч.-изд. листов 0,69.

Тираж 365. Заказ 36990.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований.
Дубна Московской области.