

85-750



ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

18-85-750

Г.Н.Флеров, Ю.Ц.Оганесян, А.Г.Белов,  
Г.Я.Стародуб

ПОЛУЧЕНИЕ КОРОТКОЖИВУЩЕГО ИЗОТОПА  $^{123}\text{I}$   
НА МИКРОТРОНЕ МТ-22

Направлено в журнал "Атомная энергия",  
на конференцию "Методы получения йода-123  
и радиофармпрепаратов на его основе"  
/Москва/

1985

## ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время при диагностике жизненно важных органов человека весьма перспективным является использование короткоживущих радиоактивных ядер <sup>123</sup>I. К их числу относится изотоп <sup>123</sup>I /T<sub>1/2</sub> = 13,3 ч/, при распаде которого испускаются монохроматические γ-кванты с энергией E<sub>γ</sub> = 159 кэВ.

В отличие от широко применяемого в медицинской практике долгоживущего γ- и β-излучателя <sup>131</sup>I /T<sub>1/2</sub> = 8 дней/ применение <sup>123</sup>I снижает интегральное биологическое воздействие препарата на организм почти в 100 раз и дает, как правило, более качественное изображение исследуемого объекта <sup>2</sup>.

Для производства <sup>123</sup>I используются протоны, дейтроны, α-частицы с энергией от нескольких десятков до сотен МэВ <sup>3</sup> и электроны с энергией около 50 МэВ <sup>4</sup>. Ускорительные установки для получения интенсивных пучков этих частиц имеют высокую эксплуатационную стоимость, и сооружение их требует больших капитальных затрат.

Важнейшее значение имеет радионуклидная чистота препарата. Как правило, в процессе облучения за счет многих открытых каналов реакции в материале мишени образуются побочные γ- и β-активные продукты, вклад которых существенно растет с увеличением энергии пучка. Это обстоятельство значительно усложняет задачу выделения изотопа <sup>123</sup>I и предъявляет жесткие требования к изотопной чистоте исходной мишени.

В известной мере указанных выше трудностей можно избежать, если для получения <sup>123</sup>I использовать реакцию <sup>124</sup>Xe(γ,n)<sup>123</sup>Xe на пучке электронов с энергией 22-25 МэВ с последующим распадом ядер <sup>123</sup>Xe /T<sub>1/2</sub> = 2,08 ч/ в искомый продукт <sup>123</sup>I /5,6/. Источником γ-квантов в этом случае могут служить интенсивные пучки электронов с энергией до 25 МэВ, которые можно получить на компактных и надежных установках /микротронах или малогабаритных линейных ускорителях/. Ниже описывается установка для производства изотопа <sup>123</sup>I на микротроне МТ-22 и приводятся результаты эксперимента для энергии ускоренных электронов 21,5 МэВ.

## ПОСТАНОВКА ОПЫТА

Для получения максимального выхода <sup>123</sup>I мы использовали мишень из газообразного ксенона, заключенного в Та-цилиндрический сосуд объемом около 7 см<sup>3</sup> при давлении ≈ 150 атм.

Принципиальная схема установки показана на рис.1.

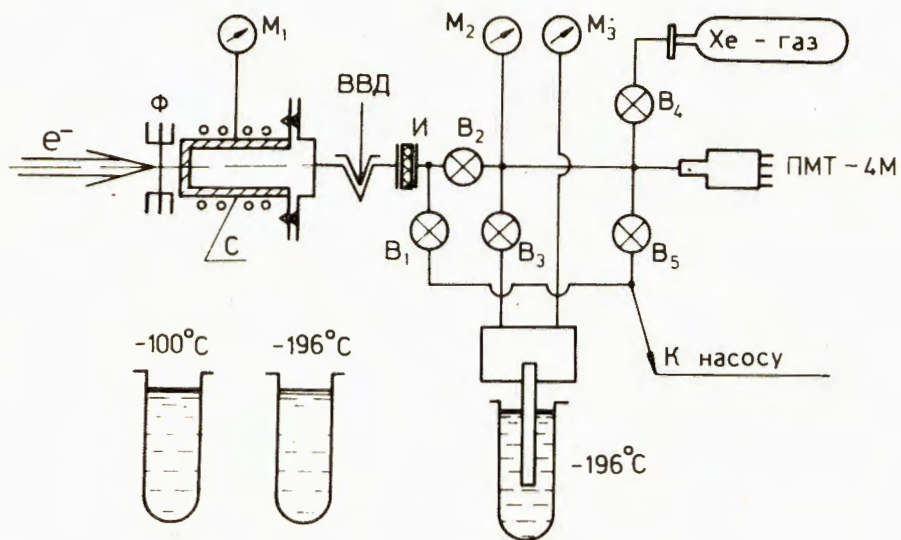


Рис.1. Схема установки для получения  $^{123}\text{I}$ .

Пучок электронов через выходное окно  $\Phi$  падает на стенку сосуда высокого давления  $C$  толщиной 2,5 мм, которая выполняет роль тормозной мишени и конвертора. Сосуд имеет игольчатый вентиль высокого давления и в процессе облучения охлаждается водой. Для перекачки газа из контейнера и наполнения сосуда  $C$  служит коммуникационная система, выполненная из медных трубок диаметром 2 мм, манометров  $M$ , сильфонных вентилях  $B$ , промежуточного объема и ванн, наполненных жидким азотом и этиловым спиртом с небольшой добавкой  $\sim 4\%$  глицерина. Температуру смеси этилового спирта с глицерином можно варьировать в требуемом диапазоне от  $-100^\circ\text{C}$  до  $-109^\circ\text{C}$  изменением соотношения между количеством спирта, глицерина и добавляемого в смесь жидкого азота. Предварительно система откачивается до давления  $10^{-3}$  Тор, затем наполняется ксеноном до давления  $\sim 3$  атм. Газообразный ксенон вымораживается в промежуточном объеме, из которого газ перекачивается в сосуд высокого давления.

Последовательно опуская сосуд  $C$  в жидкий азот и спиртовую ванну, можно, в конечном итоге, получить плотность газообразного ксенона около  $3 \text{ г/см}^3$ .

После наполнения газом сосуд  $C$  нагревается до комнатной температуры /при этом повышается давление в сосуде до 150 атм/, и проводится его облучение. По окончании облучения сосуд выдерживается под давлением в течение 6,5 ч для распада изотопа

$^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$  путем электронного захвата, после чего при температуре  $-100^\circ\text{C}$  газ перепускается в промежуточный объем. Сосуд  $C$  вскрывается, и йод со стенок смывается раствором  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \times 5\text{H}_2\text{O}$ . Для последней процедуры возможно применение и других растворов - солей калия или натрия и даже нагретой дистиллированной воды. Во всех случаях коэффициент извлечения  $^{123}\text{I}$   $\sim 95\%$ .

#### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В экспериментах использовался ксенон естественного изотопного содержания / $^{124}\text{Xe} - 0,1\%$ / и обогащенный / $^{124}\text{Xe} - 3\%$ /. Облучение проводилось электронами с энергией 21,5 МэВ и током пучка 5 мкА. Время облучения менялось от 2 до 8,5 ч.

На рис.2 и 3 приведены спектры  $\gamma$ -излучения продуктов, смытых со стенок мишени камеры. В диапазоне энергий от 10 до 200 кэВ измерения проводились детектором из чистого Ge объемом  $2,1 \text{ см}^3$  / $\Delta E_\gamma = 0,6 \text{ кэВ}$ /. Жесткая часть спектра / $E_\gamma \geq 100 \text{ кэВ}$ / измерялась с помощью Ge(Li)-детектора объемом  $80 \text{ см}^3$  с энергетическим разрешением  $\Delta E_\gamma = 2 \text{ кэВ}$ .

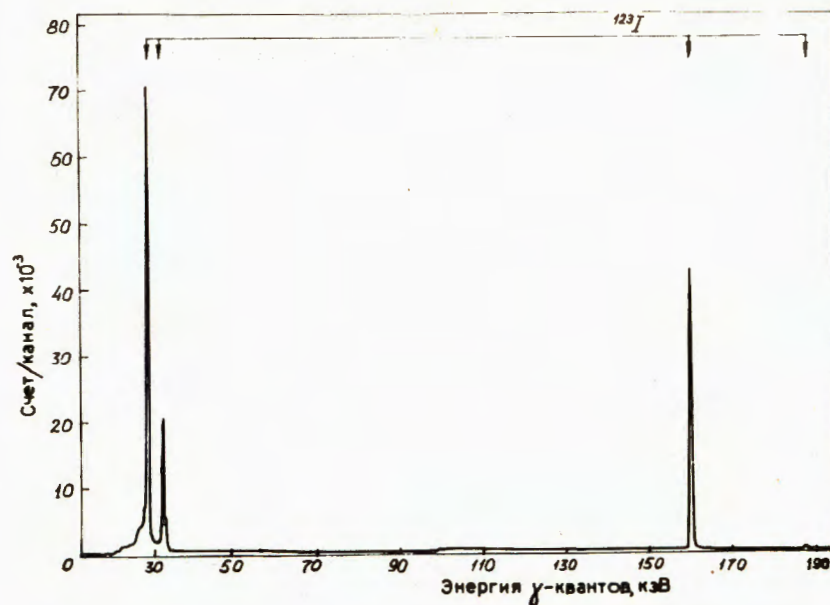


Рис.2. Энергетический спектр  $\gamma$ -квантов от выделенного препарата  $^{123}\text{I}$ , полученный с помощью тонкого германиевого детектора /  $t_{\text{обл.}} = 8,5 \text{ ч}$ ,  $t_{\text{выд.}} = 10 \text{ ч}$ ,  $t_{\text{изм.}} = 30 \text{ мин/}$ .

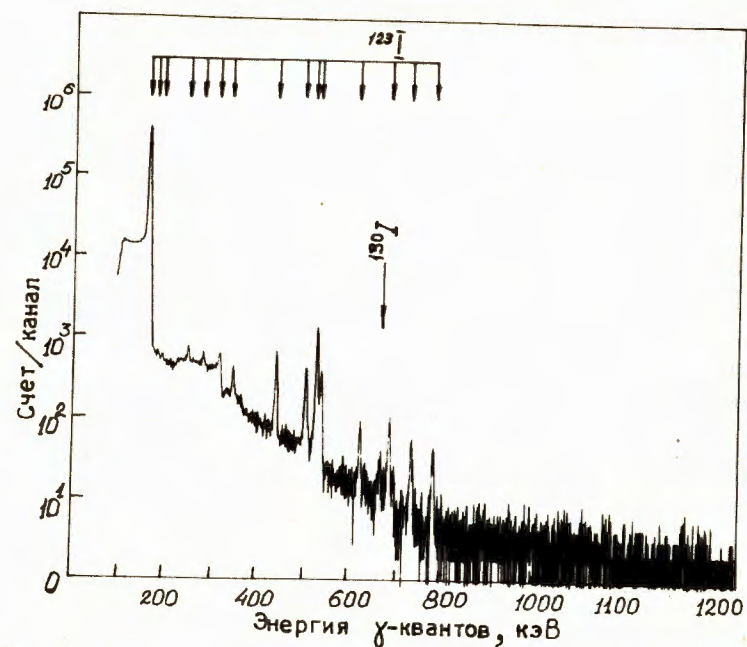


Рис.3. Энергетический спектр  $\gamma$ -квантов от выделенного препарата  $^{123}\text{I}$ , полученный с помощью  $\text{Ge}(\text{Li})$ -детектора. /  $t_{\text{обл.}} = 8,5$  ч,  $t_{\text{выд.}} = 12$  ч,  $t_{\text{изм.}} = 1$  ч/.

Спектры получены с выдержкой продукта через  $\sim 0,5$ , 4 и 10 сут после конца облучения. Из данных измерений следует, что основная часть  $\gamma$ -активности обусловлена распадом изотопа  $^{123}\text{I}$  с линией  $E_{\gamma} = 159$  кэВ. Интенсивность остальных линий /за исключением сопутствующего рентгеновского излучения йода  $E_{\text{x}} = 27,5$  и  $31$  кэВ/ на несколько порядков меньше.

В таблице приведена относительная активность примесных радионуклидов, обнаруженных в смывых продуктах. Она связана, главным образом, с распадом изотопов йода с массой от 125 до 135, причем суммарная активность изотопов, испускающих  $\gamma$ -кванты, с энергией в диапазоне  $E_{\gamma} > 40$  кэВ, не превышает сотых долей процента от активности основного изотопа  $^{123}\text{I}$  при обогащении мишени по  $^{124}\text{Xe}$  всего 3%.

На рис.4 представлена зависимость удельной активности изотопа  $^{123}\text{I}$  от энергии первичного пучка электронов. В диапазоне энергий от 14 до 18 МэВ она возрастает, как  $\sim E^{8,5}$ , при дальнейшем повышении энергии удельная активность пропорциональна  $\sim E^3$ , что согласуется с увеличением мощности тормозного излучения с ростом энергии. При энергии электронов  $E_0 = 22$  МэВ удельная активность  $^{123}\text{I}$  составляет  $\sim 0,17$  мКи/мкА.ч.г ( $^{124}\text{Xe}$ ).

Для номинальной интенсивности пучка существующего микро-трона МТ-22, равной 25 мкА, при облучении мишени аналогичной конструкции с содержанием  $^{124}\text{Xe}$  в количестве 5 г в течение 10 ч можно накопить активность  $^{123}\text{I}$  около 0,2 Ки.

Таблица  
Относительная активность радионуклидов в препарате  $^{123}\text{I}$  \*

Нуклид	$T_{1/2}$	$E$ , кэВ	Интенсивность, %	Отн. активность /обогащ.-0,1%/ $t_{\text{обл.}} = 2$ ч	Отн. активность /обогащ.-3,07%/ $t_{\text{обл.}} = 8,5$ ч
$^{123}\text{I}$	13,3ч	27,47	47	100%	100%
		31,00	12		
		159	83		
$^{125}\text{I}$	60,14д	27,47	37,4	0,57%	0,2%
		31,00	10		
		35,46	6,75		
$^{130}\text{I}$	12,5ч	536,1	99,8	30%	0,03%
		669,4	94		
$^{131}\text{I}$	8,06д	364,49	82,4	3,2%	$10^{-3}\%$
$^{133}\text{I}$	20,3ч	529,91	89,0	4,1%	$5 \cdot 10^{-4}\%$
$^{135}\text{I}$	6,68ч	546,59	86,4	3,6%	$4 \cdot 10^{-4}\%$
		1260,5	34,89		

\* Данные приведены для времени выдержки, соответствующего максимальному накоплению  $^{123}\text{I}$ .

#### ВЫВОДЫ И ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Из результатов настоящей работы следует:

1. На пучке электронов с энергией 22-25 МэВ в реакции  $^{124}\text{Xe}(\gamma, n)$  может быть получен радиоактивный изотоп  $^{123}\text{I}$  с удельной активностью 0,17-0,25 мКи/мкА.ч.г ( $^{124}\text{Xe}$ ).
2. В данной постановке опыта достигается высокая радионуклидная чистота препарата  $^{123}\text{I}$  при обогащении по изотопу  $^{124}\text{Xe} \geq 10\%$ .
3. Вещество мишени в виде обогащенного газа  $^{124}\text{Xe}$  может быть многократно использовано в течение длительного времени без заметных потерь. Продукт реакции  $^{123}\text{I}$  может быть извлечен простыми средствами с эффективностью  $\sim 95\%$ .

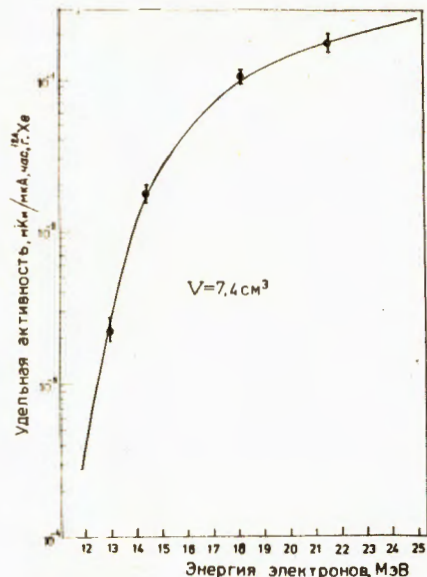


Рис.4. Удельная активность  $^{123}\text{I}$  в зависимости от энергии первичного пучка электронов. Расчет сделан для линии  $E_{\gamma} = 159$  кэВ.

Отсюда следует, что на микротроне МТ-22 при облучении мишени  $^{124}\text{Xe}$  весом 5 г в течение года /250 сеансов по 10 ч/ можно получить общую активность препарата  $^{123}\text{I}$  около 50 Ки высокой радионуклидной чистоты. Принимая во внимание, что индивидуальная доза для диагностики составляет от 0,1 мКи /щитовидная железа/ до 1 мКи /сердце, легкие и т.д./ и учитывая некоторую потерю активности препарата в интервале времени между его приготовлением и использованием /до 24 ч/, можно

полагать, что этого количества достаточно для обследования более сотни пациентов в день практически непрерывно в течение года.

Таким образом, результаты работы показывают, что микротрон при высокой экономичности обеспечивает производство изотопа  $^{123}\text{I}$  в количестве, достаточном для обслуживания большого региона. Данный способ получения  $^{123}\text{I}$  может быть за короткое время налажен во многих районах страны, что исключит трудности с транспортировкой короткоживущего излучателя на большие расстояния и сделает его общедоступным для широкого медицинского применения.

Авторы выражают глубокую благодарность профессору И.И.Зваре, принимавшему участие на первых этапах выполнения данной работы, а также за предложения по извлечению радиоактивного йода из объема мишени; научному сотруднику Фан Ану, участвовавшему в проведении измерений, а также И.В.Колесову и И.А.Харитоновой за разработку конструкции мишени.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. J.J.Burgerjon.  $\text{H}^-$  Cyclotrons for Radioisotope Production. Invited paper at Conf. Appl. of Accelerators in Research and Industry, Denton, Texas, November, 13-14, 1984.
2. Application of Iodine-123 in Nuclear Medicine Proceed. of a Conf. held in Rockville, Maryland, May 19-20, 1975.
3. Iodine-123 in Western Europe. Proceed. of a Panel Discuss. held at KFA Julich, February 13, 1976.

4. B.O.Nordell. Udet Wagenbach et al. Production of  $^{123}\text{I}$  by Photonuclear Reactions on Xenon. Int. J.Appl.Radiat. Isot. v.33, p.183, 1982.
5. Левин В.И. и др. Авторское свидетельство СССР, № 671194 от 24.10.77 г. Бюлл. ОИПОТЗ, от 28.02.80, №8, с.223.
6. Звара И.И. Возможности получения  $^{123}\text{I}$  для радиоизотопной диагностики на ускорителях электронов. ОИЯИ, 18-82-20, Дубна, 1982.

Рукопись поступила в издательский отдел  
15 ноября 1985 года.

Принимается подписка на препринты и сообщения Объединенного института ядерных исследований.

Установлена следующая стоимость подписки на 12 месяцев на издания ОИЯИ, включая пересылку, по отдельным тематическим категориям:

ИНДЕКС	ТЕМАТИКА	Цена подписки на год
1.	Экспериментальная физика высоких энергий	10 р. 80 коп.
2.	Теоретическая физика высоких энергий	17 р. 80 коп.
3.	Экспериментальная нейтронная физика	4 р. 80 коп.
4.	Теоретическая физика низких энергий	8 р. 80 коп.
5.	Математика	4 р. 80 коп.
6.	Ядерная спектроскопия и радиохимия	4 р. 80 коп.
7.	Физика тяжелых ионов	2 р. 85 коп.
8.	Криогеника	2 р. 85 коп.
9.	Ускорители	7 р. 80 коп.
10.	Автоматизация обработки экспериментальных данных	7 р. 80 коп.
11.	Вычислительная математика и техника	6 р. 80 коп.
12.	Химия	1 р. 70 коп.
13.	Техника физического эксперимента	8 р. 80 коп.
14.	Исследования твердых тел и жидкостей ядерными методами	1 р. 70 коп.
15.	Экспериментальная физика ядерных реакций при низких энергиях	1 р. 50 коп.
16.	Дозиметрия и физика защиты	1 р. 90 коп.
17.	Теория конденсированного состояния	6 р. 80 коп.
18.	Использование результатов и методов фундаментальных физических исследований в смежных областях науки и техники	2 р. 35 коп.
19.	Биофизика	1 р. 20 коп.

Подписка может быть оформлена с любого месяца текущего года.

По всем вопросам оформления подписки следует обращаться в издательский отдел ОИЯИ по адресу: 101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79.

Флеров Г.Н., Оганесян Ю.Ц., Белов А.Г., Стародуб Г.Я.  
Получение короткоживущего изотопа  $^{123}\text{I}$  на микротроне МТ-22

18-85-750

Описывается методика и приводятся экспериментальные результаты по получению радиоактивного изотопа  $^{123}\text{I}$  /  $T_{1/2} = 13,3$  ч/ в реакции  $^{124}\text{Xe}(\gamma, n)^{123}\text{Xe}$  на пучке электронов с энергией 21,5 МэВ. Опыты проводились на газобразных мишенях ксенона с содержанием изотопа  $^{124}\text{Xe}$  - 0,1% / естественное обогащение/ и 3%. Показано, что в данной постановке опыта при облучении мишени из  $^{124}\text{Xe}$  весом 5 г в течение 10 часов пучком электронов интенсивностью 25 мкА может быть получен препарат  $^{123}\text{I}$  активностью - 0,2 Ки высокой радионуклидной чистоты. Эксперименты проводились на микротроне МТ-22 Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1985

Перевод авторов

Flerov G.N., Oganessian Yu.Ts., Belov A.G., Starodub G.Ya.  
Production of  $^{123}\text{I}$  Short-Lived Isotope on MT-22 Microtron

18-85-750

The technique is described and experimental results are presented for producing of radioactive  $^{123}\text{I}$  isotope /  $T_{1/2} = 13.34$  h/ in  $^{124}\text{Xe}(\gamma, n)^{123}\text{Xe}$  reaction on 21.5 MeV energy electron beam. The experiments were performed on gaseous xenon targets with abundances of  $^{124}\text{Xe}$  - 0.1% /natural abundance/ and 3%. It is shown that in this technique for bombarding 5 g  $^{124}\text{Xe}$  target by 25  $\mu\text{A}$  electron beam during 10 hours one can get the high purity  $^{123}\text{I}$  specimen with -0.2 Ci activity. The experiments have been performed on MT-22 microtron of the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1985