

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P6-85-254

Н.Г.Зайцева, А.С.Ковалев, О.Кнотек, В.А.Халкин,
В.А.Агеев,* А.А.Ключников,* А.Ф.Линев*

ПОЛУЧЕНИЕ ^{201}Tl
ИЗ СВИНЦА, ОБЛУЧЕННОГО ПРОТОНАМИ
С ЭНЕРГИЕЙ 65 МэВ

Направлено в журнал "Радиохимия"

* Институт ядерных исследований АН УССР, Киев

1985

ВВЕДЕНИЕ

Среди примерно двадцати радионуклидов, которые получают в реакциях с ускоренными ионами для медицинской радиодиагностики, одним из наиболее важных в настоящее время является нейтронодефицитный изотоп таллия ^{201}Tl . Его период полураспада $T_{1/2} = 73,5$ ч, энергия рентгеновского $E_x = 69-83$ кэВ/ и гамма-излучений $E_\gamma = 135$ и 167 кэВ/, возможность получать радиохимически чистые препараты радионуклида с высокой удельной активностью и, наконец, биологические свойства одновалентного таллия позволяют успешно использовать ^{201}Tl для диагностики заболеваний коронарной артерии ^{1/}.

Суммарное производство ^{201}Tl в мире до последнего времени оценивалось величиной около 1000 Ки в год ^{2/}. Среди разнообразной радиоизотопной продукции, получаемой на циклотронах, в таком же количестве производится лишь ^{67}Ga . Как следует из недавнего сообщения ^{3/}, большие количества ^{201}Tl /до 500 Ки в неделю/ будут производиться в США на специализированном для этой цели сильноточном линейном ускорителе протонов с энергией 45 МэВ и током 5 мА. Все эти цифры показывают, какое значение придает-ся этому радионуклиду.

Получение ^{201}Tl с радионуклидной чистотой, удовлетворяющей требованиям ядерной медицины, в принципе возможно при бомбардировке протонами мишеней ^{203}Tl , ^{205}Tl , ^{206}Pb /табл.1/ ^{4/}. Радиоталлий, получаемый при облучении ртути ^{9/} или свинца и висмута ^{10/} протонами с энергией 36 МэВ и 660 МэВ соответственно, в ядерной медицине не используется из-за относительно больших примесей радионуклидов ^{200}Tl $T_{1/2} = 26,1$ ч, $E_\gamma = 367$ кэВ и выше/ и ^{202}Tl $T_{1/2} = 12$ сут, $E_\gamma = 439$ кэВ/, более жесткое излучение которых ухудшает разрешение изображения распределения радиоталлия в организме пациента, получаемого с помощью сцинтилляционной камеры ^{11/}.

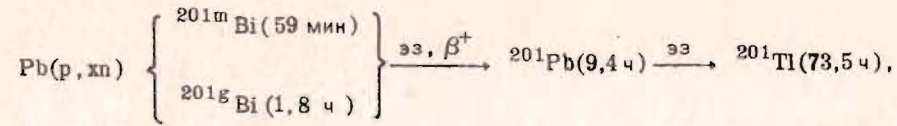
Использование ^{203}Tl и ^{205}Tl в качестве материалов мишеней требует проведения двухступенчатой процедуры получения ^{201}Tl в состоянии, свободном от носителя. На первой стадии выделяется препарат, содержащий радиоактивный свинец, тщательно очищенный от загрязнений микроколичествами высокотоксичного таллия. Далее, через 30-40 часов, необходимых для накопления ^{201}Tl из ^{201}Pb , производится отделение радиоталлия от свинца и его очистка. Очевидно, что при такой методике происходят значительные потери ^{201}Pb /и, следовательно, ^{201}Tl / за счет радиоактивного

НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ РАДИОФИЗИКИ
И ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ
АКАДЕМИИ НАУК СССР

Реакция	Q , МэВ	Мишень, форма	Энергия протонов, МэВ	Выход (теоретический) мкд/мкд-час	Загрязнение, %	Ссылка
$^{203}\text{Tl}(p, 3n)^{201}\text{Pb}$ 9,4 час ^{201}Tl	-17,7	^{203}Tl (>95%) металл., сульфат Tl и т.д.	26-28 (нач.) 20-22 (кон.)	2,2	^{200}Tl < 1 ^{202}Tl < 0,5 ^{203}Pb следы Tl следы < 10^{-5} г/мл	I, 5, 6
$^{205}\text{Tl}(p, 5n)^{201}\text{Pb}$ 9,4 час ^{201}Tl	-31,9	^{205}Tl (>99%) металл., сульфат Tl и т.д.	44-46 (нач.) 38-40 (кон.)	2,0	^{200}Tl < 1,5 ^{202}Tl < 1,0 ^{203}Pb следы Tl следы < 10^{-5} г/мл	7
$^{206}\text{Pb}(p, 6n)^{201}\text{Bi}$ 5,2 мин и 1,8 ч ^{201}Pb 9,4 час \rightarrow ^{201}Tl	-44,0	^{206}Pb (>99%) и радиогенный > 90%, металл, окись, сульфат	60-61 (нач.) 52-54 (кон.)	2,5-3,0	^{200}Tl < 0,5 ^{202}Tl < 0,1	8

распада как во время облучения, так и на первом этапе радиохимической переработки облученной мишени таллия.

Если же в качестве материала мишени использовать свинец, и, соответственно, реакции



то теоретически представляется возможным снизить потери ^{201}Tl и упростить методику его выделения. В этом случае: 1/ практически не будет потерь, связанных с распадом ^{201}Pb во время облучения, 2/ сброс материала мишени и выделение таллия можно проводить в одной стадии, 3/ полностью исключается загрязнение препарата радиоталлия стабильным таллием, 4/ за время, необходимое для накопления ^{201}Tl в свинцовой мишени, существенно будет снижаться ее общая активность, что облегчает переработку.

Исходя из литературных данных о сечениях реакций (р, 6n) на мишенях таллия и свинца ^{7,12,13/}, можно было ожидать, что при облучении ^{206}Pb выход ^{201}Tl будет не меньше, чем из ^{203}Tl , при одинаковой радиоизотопной чистоте /табл.1/. Эти и ряд других соображений делали целесообразной экспериментальную проверку возможности получения ^{201}Tl из мишеней свинца. Аналогичными соображениями о целесообразности использования мишеней свинца при производстве ^{201}Tl руководствовались также и авторы опубликованной во время завершения наших исследований статьи ^{8/}, в которой сообщалось о результатах облучения природного свинца протонами с энергией 65,6 МэВ.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для облучения использовался химически чистый природный свинец и свинец, обогащенный изотопами ^{206}Pb и ^{207}Pb /табл.2/, приобретенный в Государственном фонде стабильных изотопов СССР. Из свинцовой фольги толщиной ~ 0,2 мм штампом вырезались диски диаметром 10 мм. Толщина каждого диска определялась по весу (-0,22 г/см²). Из этих дисков собирались мишени толщиной до 3-4 г/см².

Мишени облучались внешним пучком протонов с энергией 64 ± 1 МэВ на изохронном циклотроне У-240 Института ядерных исследований АН УССР /Киев/. Соответствующая этой энергии величина сечения мониторинговой реакции $^{27}\text{Al}(p, 3pn)^{24}\text{Na}$, равная 11,2 мб ^{14/}, была взята для расчета потока протонов, проходящих через мишень. Так как мишени при облучении не охлаждались, величина тока протонов была ограничена 20-30 нА.

Таблица 2

Изотопный состав мишеней из природного и обогащенного свинца

Мишень	Изотопный состав в %			
	^{204}Pb	^{206}Pb	^{207}Pb	^{208}Pb
Pb природный	1,4	24,1	22,1	52,4
^{206}Pb	0,02	95,9	2,76	1,34
^{207}Pb	0,01	1,39	93,20	5,41

Химические примеси других элементов /по паспорту/ не превышают 10^{-3} - 10^{-4} %; примеси тяжелых элементов, в том числе таллия, отсутствуют.

Таблица 3

Энергии гамма-квантов таллия и свинца и их относительные интенсивности 15 , использованные для расчета активности

Изотоп	$T_{1/2}$	E_γ , кэВ	% на распад
^{200}Tl	26,1 час	367	88,6
^{201}Tl	73,5 час	167	9,0
^{202}Tl	12,2 дн.	439	91,0
^{201}Pb	9,4 час	331	78,4

Активности изотопов таллия в дисках определялись по интенсивности гамма-квантов, сопровождающих распад радионуклидов ^{200}Tl , ^{201}Tl и ^{201}Pb и ^{202}Tl /табл.3/. Измерения проводились с помощью спектрометра с $\text{Ge}(\text{Li})$ -детектором объемом 40 см^3 , присоединенного к 4096-канальному анализатору. Разрешение спектрометра равно 1,2 кэВ на линии 122 кэВ и 2,1 кэВ на линии 1332 кэВ. Каждый диск измерялся 3-4 раза в интервале времени от 30 до 200 часов после конца облучения /ПКО/. Площади под фотопиками гамма-лучей определялись в измеренных гамма-спектрах с помощью программы ЭТАП 16 на ЭВМ ЕС-1010, и их значения использовались для расчета выходов радионуклидов таллия на время, оптимальное для накопления ^{201}Tl из ^{201}Pb , равное 32 часам ПКО.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты измерений дифференциальных выходов ^{200}Tl , ^{201}Tl и ^{202}Tl в зависимости от толщины мишеней из обогащенного свинца ^{206}Pb и ^{207}Pb и природного свинца показаны на рис.1-5. Точки на рисунках представляют среднеарифметические величины активностей, рассчитанных для отдельных дисков мишени. Экспериментальные погрешности определения величин выходов радионуклидов таллия лежат в пределах $\pm 10\%$. Приблизительно оцененная систематическая ошибка, обусловленная рядом факторов, в том числе неточностью хода кривой абсолютной эффективности регистрации гамма-лучей детектором и определением потока протонов, составляет около $\pm 20\%$.

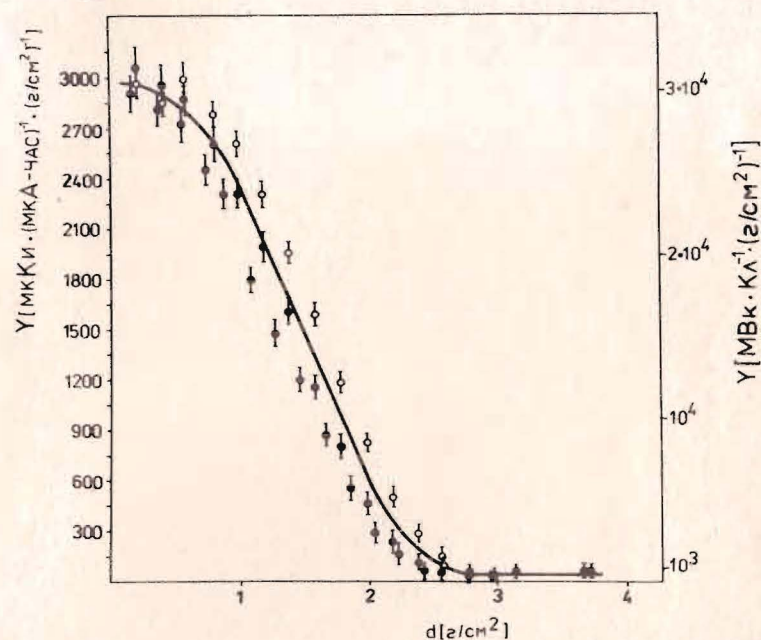


Рис.1. Выход ^{201}Tl в зависимости от толщины мишеней ^{206}Pb /№ мишеней: 1 - ●, 2 - ○, 3 - ○/. $E_p = 65 \text{ МэВ}$.

Из анализа приведенных на рисунках результатов и величин выходов радионуклидов $^{200-202}\text{Tl}$ в толстой мишени через 32 часа ПКО /табл.4/ следует, что наибольший выход ^{201}Tl (~4 МКК/мкА-час) при наименьших загрязнениях другими радионуклидами таллия получается при облучении мишеней ^{206}Pb . При облучении ^{207}Pb выход ^{201}Tl на порядок меньше при относительно высоких содержаниях ^{200}Tl и ^{202}Tl . При облучении природного свинца выходы ^{201}Tl

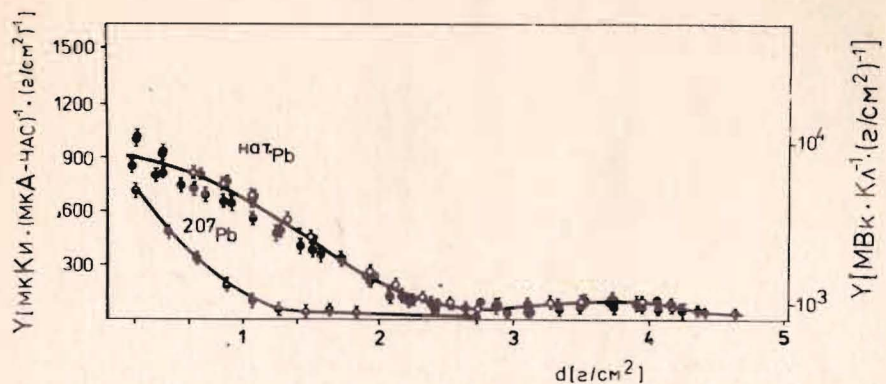


Рис. 2. Выход ^{201}Tl в зависимости от толщины мишеней природного свинца и свинца-207 / № мишеней: 4 - \circ , 5 - \circ , 6 - \circ , 7 - \bullet , 8 - \bullet / , $E_p = 65$ МэВ.

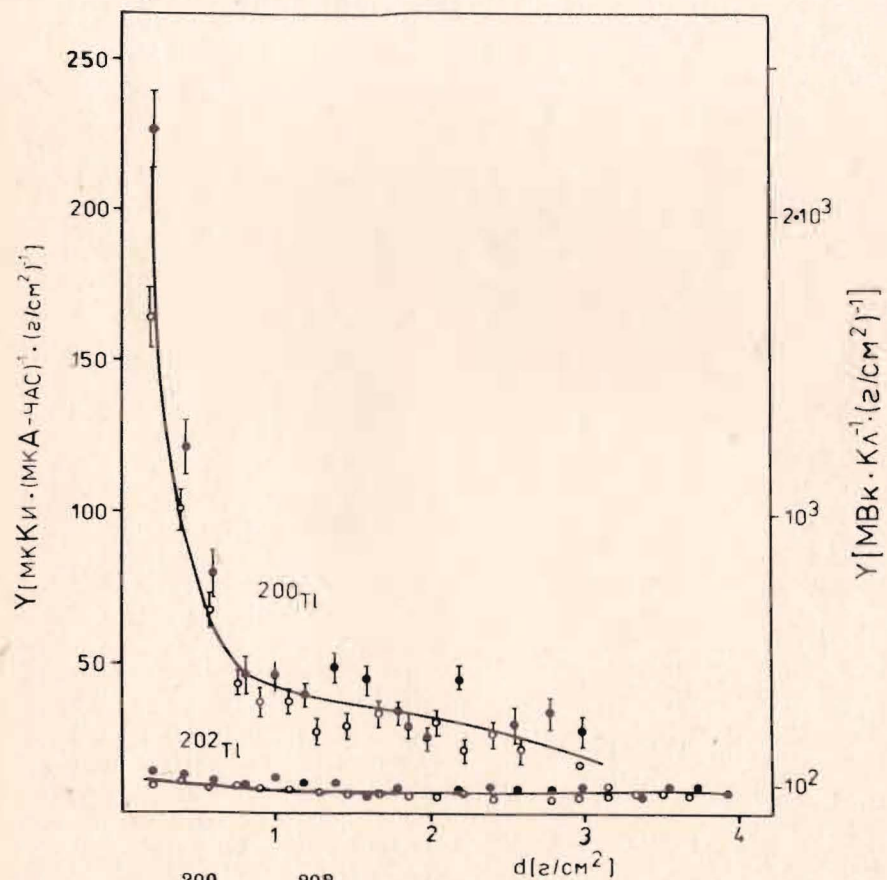


Рис. 3. Выход ^{200}Tl и ^{202}Tl в зависимости от толщины мишеней из ^{206}Pb / № мишеней: 2 - \bullet , 3 - \circ / , $E_p = 65$ МэВ.

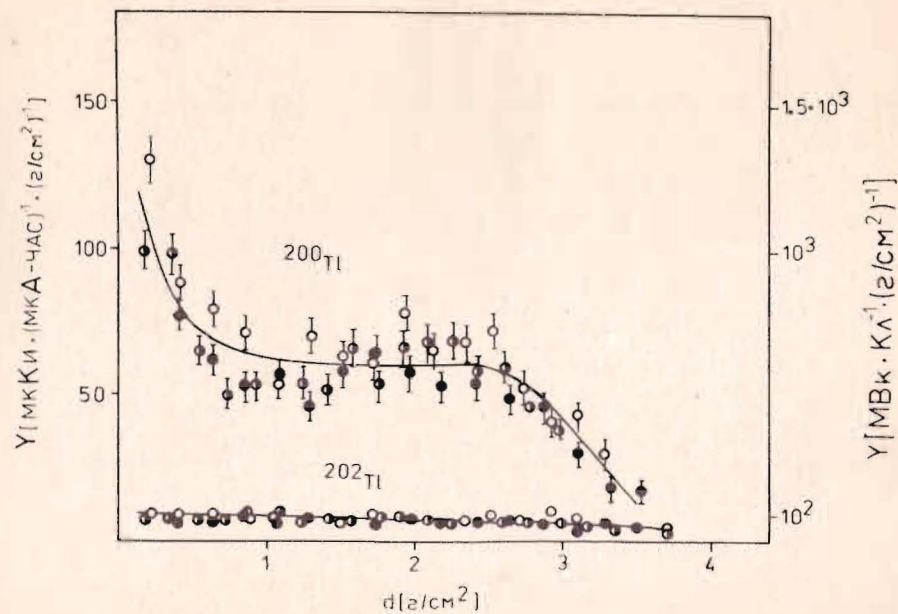


Рис. 4. Выход ^{200}Tl и ^{202}Tl в зависимости от толщины мишеней из природного свинца: 4 - \circ , 6 - \circ , 7 - \bullet , $E_p = 65$ МэВ.

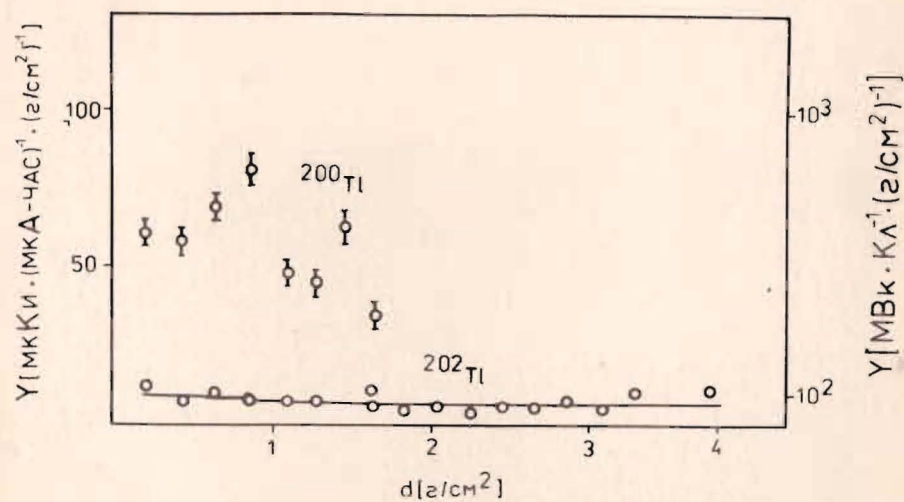


Рис. 5. Выход ^{200}Tl и ^{202}Tl в зависимости от толщины мишени свинца-207, $E_p = 65$ МэВ.

Таблица 4

Выход и относительное содержание изотопов таллия в толстых мишенях свинца различного изотопного состава, облученных протонами с энергией ≈ 65 МэВ. Величины рассчитаны на 32 часа ПКО

Мишень	№ мишени	Толщина мишени г/см ²	мКи/мкА-час			%		
			²⁰¹ Tl	²⁰⁰ Tl	²⁰² Tl	²⁰¹ Tl	²⁰⁰ Tl	²⁰² Tl
²⁰⁶ Pb	1	2,57	4030	162	24	95,6	3,8	0,6
	2	2,57	4600	237	24	94,6	4,9	0,5
	3	2,60	3680	120	18	96,4	3,1	0,5
прир.-Pb	4	2,42	1170	154	16	87,3	11,5	1,2
	5	2,53	1330	190	21	86,3	12,3	1,4
	6	2,42	1220	157	17	87,5	11,3	1,2
	7	2,44	1350	266	26	82,2	16,2	1,6
	ж)	2,6	1230	280		81,5	19,5	
²⁰⁷ Pb	8	2,45	480	96	18	80,8	16,2	3,0

* Данные работы /8/.

были примерно в 3 раза ниже, а примеси ²⁰⁰Tl и ²⁰²Tl в три-четыре раза выше, чем при облучении ²⁰⁶Pb.

Рассчитанные на основании наших измерений выходы ²⁰¹Tl и ²⁰⁰Tl из природного свинца оказались близкими к величинам, приведенным в работе /8/.

Разделение микроколичеств радиоталлия и трех-четырех граммов свинца относительно легко провести несколькими избирательными для таллия методами, например, отгонкой фторидов или окислов таллия из соответствующих соединений свинца /17,18/ или адсорбцией анионных комплексов трехвалентного таллия на катионообменных смолах типа КУ-2 или Дауэкс-50 /19/. Мы остановились на последнем методе благодаря его хорошей воспроизводимости и простоте выполнения /10/.

Схема методики выделения радиоталлия из облученного свинца была следующая. Свинец растворяли в HNO₃ и осаждали в виде PbBr₂. Полученный после отделения осадка фильтрат 3 моль по KBr, содержащий небольшое количество Br₂, пропускали через колонку, заполненную ионообменной смолой КУ-2x4 /или Дауэкс 50x4/, в которой задерживался комплексный ион [TlBr₄]⁻. После тщательной промывки колонки для удаления следов свинца и радиоактивного висмута таллий элюировался 1 моль HCl. Химический выход радиоталлия был около 80%.

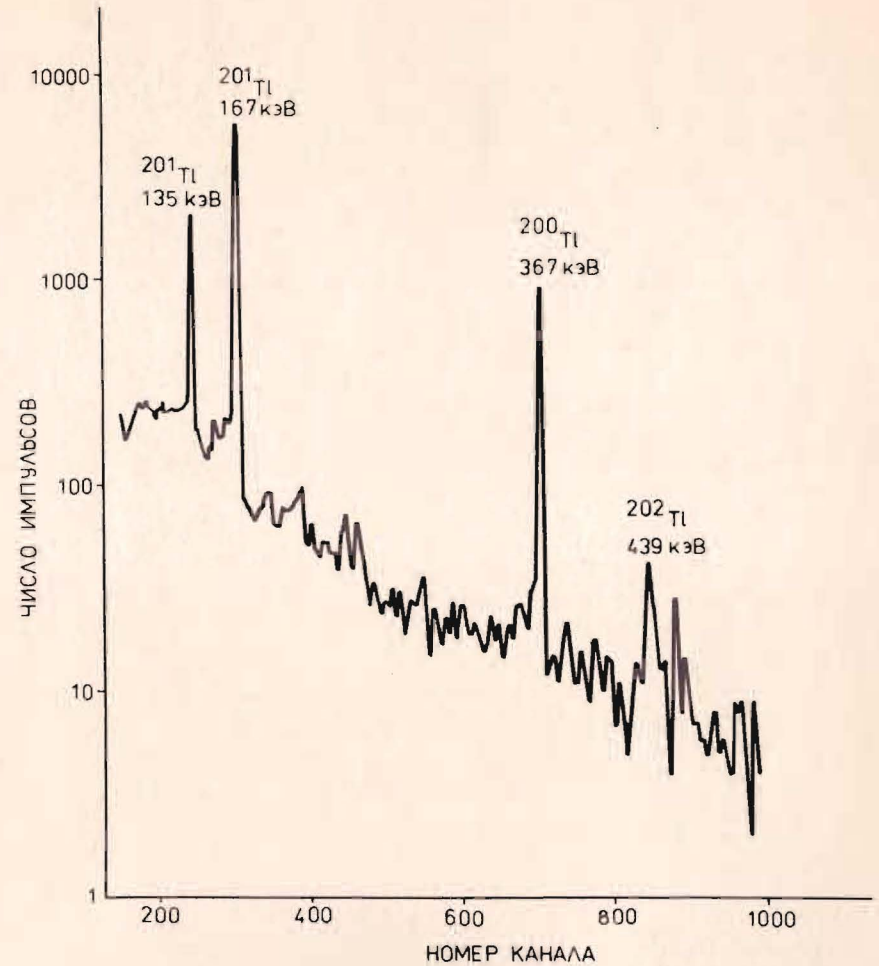


Рис.6. Гамма-спектр препарата радиоактивного таллия, выделенного из ²⁰⁶Pb через 31 ч ПКО и измеренный через 5 ч после выделения.

Гамма-спектр препарата радиоталлия, выделенного из облученного потоком протонов с $E_p = 64 \pm 1$ МэВ ²⁰⁶Pb, показан на рис.6. Радионуклидная чистота препарата по ²⁰¹Tl равна 95-96%. Примеси ²⁰⁰Tl и ²⁰²Tl можно, в принципе, сократить, меняя энергетическое окно. Например, если снизить энергию налетающих протонов на 2 МэВ и толщину мишени до 1,6 г/см², то примеси ²⁰⁰Tl и ²⁰²Tl снизятся до 2,5% и 0,4% соответственно; при этом выход ²⁰¹Tl уменьшится до 2,5-3 мКи/мкА-ч. Дальнейшее снижение энергии протонов нецелесообразно, так как выход ²⁰¹Tl будет падать при практически постоянных выходах ²⁰⁰Tl и ²⁰²Tl /рис.1 и 3/.

Относительно высокое содержание радионуклидных примесей - единственный недостаток применения мишени ^{206}Pb для получения ^{201}Tl по сравнению с мишенью из ^{208}Tl . Однако согласно проведенным оценкам ^{16/} с учетом периода полувыведения таллия из организма /35,6 ч/ относительное содержание радионуклидных примесей около 3-5% в препарате ^{201}Tl не будет существенно повышать получаемую пациентом радиационную дозу, и пригодность ^{201}Tl , выделенного из ^{206}Pb , для ядерно-медицинских исследований будет определяться качеством диагностической аппаратуры. Проведенные экспериментальные исследования ^{120/} показывают, что соответствующий выбор коллиматора и энергетического окна анализатора для сцинтилляционной камеры позволяет снизить отрицательное влияние примесей ^{202}Tl на качество изображения.

В заключение авторы выражают благодарность группе циклотрона за проведение облучений, В.Б.Бруданину, А.Ф.Новгородову за обеспечение работы измерительного центра и Г.Доберенц за помощь в работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. Lebowitz E. et al. J.Nucl.Med., 1975, 16, p.151.
2. Cyclotron Facilities with Radionuclide Production Programmes in Member States. IAEA, Jan., Vienna, 1983.
3. Comastra D.D. Ind.Res.Developm., Sept., 1981, p.119.
4. Lagunas-Solar M.C. IEEE Trans.Nucl.Sci., NS-30, 1983, p.1805.
5. Lagunas-Solar M.C. et al. Int.J.Appl.Rad.Isotopes, 1978, 29, p.159.
6. Qaim S.M., Weinreich R., Ollig H. Int.J.Appl.Rad.Isotopes, 1979, 30, p.85.
7. Lagunas-Solar M.C., Jungerman J.A., Paulson D.W. Int.J. Appl.Rad. Isotopes, 1980, 31, p.117.
8. Lagunas-Solar M.C., Little F.E., Jungerman J.A. Int.J. Appl.Rad.Isotopes, 1981, 32, p.817.
9. Goetz L. et al. J.Radioanal.Chem., 1981, 67, p.183.
10. Adilbish M. et al. Radiochem.Radioanal.Lett., 1980, 45, p.227.
11. Pohost G.M. Nucl.Med., 1978, 17, Heft 4, p.149.
12. Bell R.E., Skarsgard H.M. Can.J.Phys., 1956, 34, p.745.
13. Nowotny R. Int.J.Appl.Rad.Isotopes, 1981, 32, p.73.
14. Diksic M., Yaffe L. J.Inorg.Nucl.Chem., 1977, 39, p.1299.
15. Lederer C.M., Shirley V.S. (eds.). Table of Isotopes, 7th Ed., Wiley, 1978.
16. Гопыч П.М. и др. В кн.: Материалы совещания по программированию и математическим методам решения физических задач. ОИЯИ, Д10,11-1126, Дубна, 1978, с.330.

17. Вандлик Я. и др. Радиохимия, 1973, 15, с.831.
18. Баяр Б., Зайцева Н.Г., Новгородов А.Ф. Радиохимия, 1974, 16, с.901.
19. Зайцева Н.Г., Норсеев Ю.В., Халкин В.А. Радиохимия, 1982, 24, с.625.
20. Groch M.W., Lewis G.K. J.Nucl.Med., 1976, 17, p.142.

Рукопись поступила в издательский отдел
10 апреля 1985 года.