

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

P6-85-804

Н.Г.Зайцева, О.Кнотек, Ким Сен Хан, П.Микец,  
В.А.Халкин, В.А.Конов,\* Л.М.Поппиненкова\*

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЫХОДОВ ТАЛЛИЯ-200, 201, 202  
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ МИШЕНЕЙ  
ОБОГАЩЕННОГО СВИНЦА ПРОТОНАМИ  
С ЭНЕРГИЕЙ 100 МэВ

Направлено в журнал "Радиохимия"

\* Институт физики высоких энергий, Серпухов

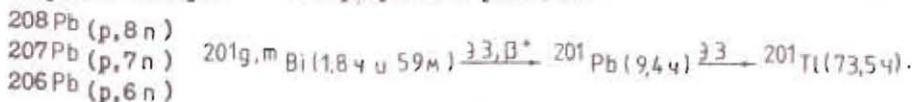
1985

## Введение

Радионуклид  $^{201}\text{Tl}$  широко применяется в ядерной медицине для исследований сердечно-сосудистых заболеваний благодаря своим ядерно-физическим ( $T_{1/2}=73,5$  ч,  $E_{\gamma}=69-83$  кэВ,  $E_{\beta}=135$  и  $167$  кэВ) и биологическим характеристикам <sup>1/1/</sup>. Начиная с 1970 г., когда  $^{201}\text{Tl}$  был впервые предложен для этих целей <sup>1/2/</sup>, интерес к нуклиду настолько возрос, что для его производства в настоящее время построен специальный ускоритель, позволяющий получать  $^{201}\text{Tl}$  до 500 Ки в неделю <sup>1/3/</sup>, а общее его производство в мире по данным на 1982 г. (без упомянутого ускорителя) оценивалось цифрой около 1000 Ки/год <sup>1/4/</sup>.

В работе <sup>1/5/</sup> приведены характеристики способов получения  $^{201}\text{Tl}$  при облучении мишеней таллия и свинца; в работе <sup>1/6/</sup> подробно рассмотрены преимущества и недостатки этих способов и описано получение  $^{201}\text{Tl}$  из  $^{206}\text{Pb}$ , облученного протонами с энергией 65 МэВ. Использование толстой мишени ( $2,6$  г/см<sup>2</sup>) обогащенного  $^{206}\text{Pb}$  (95,9%) позволило получить около 4 мКи/мкА-ч  $^{201}\text{Tl}$  с радионуклидной чистотой 95-96%.

На ускорителях, имеющих протонный пучок с энергией 100 МэВ, для получения  $^{201}\text{Tl}$  представляется возможным использовать мишени из свинца, обогащенного стабильными изотопами  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  и  $^{206}\text{Pb}$ , при облучении которых  $^{201}\text{Tl}$  образуется в реакциях:



В настоящей работе определялись выходы  $^{201}\text{Tl}$ ,  $^{200}\text{Tl}$  и  $^{202}\text{Tl}$  из мишеней свинца, обогащенных изотопами  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  и  $^{206}\text{Pb}$ , при облучении их протонами с энергией 100 МэВ на линейном ускорителе ЛУ-100 в Институте физики высоких энергий (Протвино).

## Экспериментальная часть

Из фольги металлического свинца ( $\sim 0,2$  мм), обогащенного изотопами  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  или  $^{206}\text{Pb}$  (табл. I, приобретен в Государственном фонде стабильных изотопов СССР) вырезались штампом диски диаметром 10 мм и толщиной 0,15-0,20 г/см<sup>2</sup>. Диски собирались в мишень для облучения (рис. I), упакованную в тонкостенный Al-контейнер. Она содер-

Таблица 1. Изотопный состав мишеней из обогащенного свинца

Мишень	Изотопный состав, %			
	$^{204}\text{Pb}$	$^{206}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}$
$^{206}\text{Pb}$	0,01	$94,0 \pm 0,1$	4,04	1,96
$^{207}\text{Pb}$	0,01	2,66	$89,0 \pm 0,1$	8,24
$^{208}\text{Pb}$	0,08	0,82	1,6	$97,5 \pm 0,1$

Химические примеси других элементов (по паспорту) не превышают  $10^{-3}$  -  $10^{-4}\%$ ; для тяжелых элементов указана примесь висмута  $< 3 \cdot 10^{-4}\%$ .



жала 2 диска из алюминия ( $0,028 \text{ г/см}^2$ ) и 60 свинцовых дисков, расположенных по оси протонного пучка триадами  $^{208}\text{Pb}$  -  $^{207}\text{Pb}$  -  $^{206}\text{Pb}$  при общей толщине всех триад около  $11 \text{ г/см}^2$ . Такое устройство мишени позволяло в одном овансе облучения одновременно получать данные о выходах нуклидов таллия в энергетической области от 100 до 50 МэВ для обогащенного кадмия из этих изотопов свинца.

Мишени экспонировались в выведенном пучке протонов с энергией 100 МэВ на ЛУ-100 при среднем токе  $\sim 20 \text{ нА}$  в течение 3-5 часов. Количество протонов, прошедших через мишень за это время, определялось по реакции  $^{27}\text{Al}(\text{p}, 3\text{p})^{24}\text{Na}$ ;  $\sigma_{24\text{Na}} = 10 \text{ мб}$  [7]. Поглощение энергии протонов в Al и Pb рассчитывалось по известным табличным данным [8].

Выходы радионуклидов  $^{201}\text{Tl}$ ,  $^{200}\text{Tl}$  и  $^{202}\text{Tl}$  рассчитывались на 33 часа после конца облучения (оптимальное время накопления  $^{201}\text{Tl}$  из  $^{201}\text{Pb}$ ) на основе гамма-спектрометрических измерений каждого образца [6,9].

#### Результаты и обсуждение

Кривые на рис. 2 показывают зависимость дифференциальных выходов  $^{201}\text{Tl}$ ,  $^{200}\text{Tl}$  и  $^{202}\text{Tl}$  от толщины мишеней  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  и  $^{206}\text{Pb}$ . Точки на кривых представляют среднеарифметические величины выходов, рассчитанные по результатам 4-5 измерений активности каждого диска

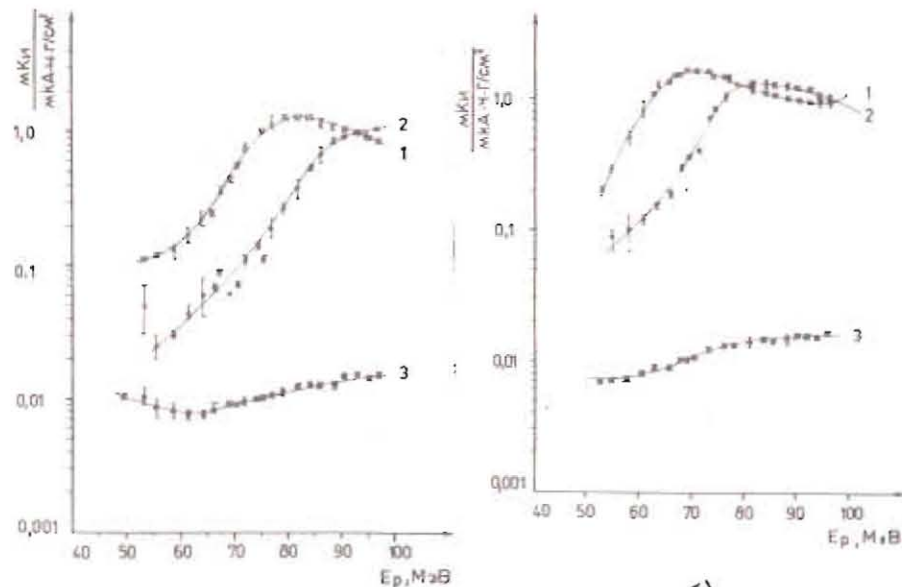
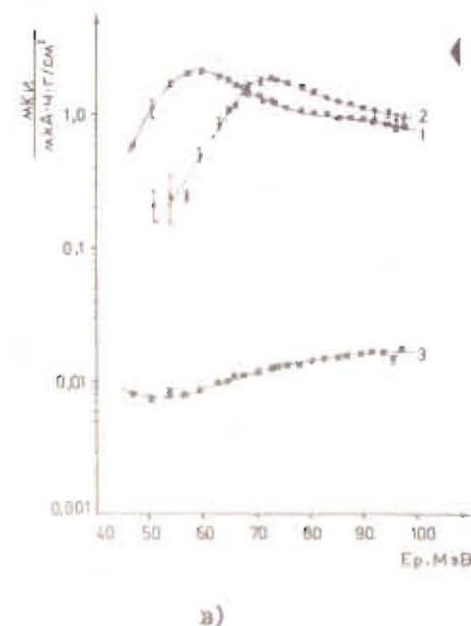


Рис. 2. Выход радионуклидов таллия в зависимости от толщины мишеней свинца:  $^{208}\text{Pb}$  (а),  $^{207}\text{Pb}$  (б),  $^{206}\text{Pb}$  (в); 1 -  $^{201}\text{Tl}$ , 2 -  $^{200}\text{Tl}$ , 3 -  $^{202}\text{Tl}$ .  $E_p = 100 \text{ МэВ}$ .



свинца для трех независимых экспериментов с погрешностью определения  $\pm 10\%$ . Вероятная систематическая ошибка по нашим оценкам была равна  $\pm 20\%$ . Она складывалась из ошибок, полученных при определении интенсивности протонного пучка ( $\pm 13\%$ ), абсолютной эффективности регистрации  $\gamma$ -лучей детектором ( $\pm 10\%$ ), самопоглощения  $\gamma$ -лучей в образце и коэффициента геометрии измерения ( $\pm 10\%$ ), данных о распаде нукли-



Таблица 2. Ядерные реакции, в результате которых образуются радионуклиды таллия- $^{201}\text{Tl}$ ,  $^{200}\text{Tl}$  и  $^{202}\text{Tl}$  при облучении свинца протонами с энергией 100 МэВ

Продукты ядерных реакций	$^{206}\text{Pb}$ (-0, МэВ)	$^{207}\text{Pb}$ (-0, МэВ)	$^{208}\text{Pb}$ (-0, МэВ)
$^{200}\text{Bi}$ , $^{36}\text{M}$ $\xrightarrow{^{200}\text{Pb}, 21,5 \text{ ч}}$ $^{200}\text{Tl}$ (26,1 ч)	$p, 7 \text{ n}$ (53,06)	$p, 8 \text{ n}$ (59,80)	$p, 9 \text{ n}$ (67,17)
$^{200}\text{Pb} \xrightarrow{^{200}\text{Pb}}$ $^{200}\text{Tl}$	$p, p6 \text{ n}$ (46,07)	$p, p7 \text{ n}$ (52,81)	$p, p8 \text{ n}$ (60,18)
$^{200}\text{Tl} \xrightarrow{^{200}\text{Tl}}$ $^{200}\text{Tl}$	$p, \alpha 3 \text{ n}$ (16,30)	$p, \alpha 4 \text{ n}$ (23,34)	$p, \alpha 5 \text{ n}$ (30,71)
$^{201}\text{Bi}$ , $1,8 \text{ ч}$ и $59 \text{ M}$ $\xrightarrow{^{201}\text{Pb}, 2,4 \text{ ч}}$ $^{201}\text{Tl}$ (73,5 ч)	$p, 6 \text{ n}$ (44,04)	$p, 7 \text{ n}$ (50,78)	$p, 8 \text{ n}$ (58,15)
$^{201}\text{Pb} \xrightarrow{^{201}\text{Pb}}$ $^{201}\text{Tl}$	$p, p5 \text{ n}$ (38,83)	$p, p6 \text{ n}$ (45,57)	$p, p7 \text{ n}$ (52,94)
$^{201}\text{Tl} \xrightarrow{^{201}\text{Tl}}$ $^{201}\text{Tl}$	$p, \alpha 2 \text{ n}$ (8,40)	$p, \alpha 3 \text{ n}$ (15,14)	$p, \alpha 4 \text{ n}$ (22,61)
$^{202}\text{Bi}$ , $1,7 \text{ ч}$ $\xrightarrow{^{202}\text{Pb}}$ $^{202}\text{Tl}$ ( $10^5 \text{ л}$ )	$p, 5 \text{ n}$ (36,33)	$p, 6 \text{ n}$ (43,07)	$p, 7 \text{ n}$ (50,44)
$^{202\text{m}}\text{Pb}, 3,7 \text{ ч}$ $\xrightarrow{^{202\text{m}}\text{Pb}}$ $^{202}\text{Tl}$ (12,2 д)	$p, p4 \text{ n}$ (30,17)	$p, p5 \text{ n}$ (36,91)	$p, p6 \text{ n}$ (44,28)
$^{202}\text{Tl} \xrightarrow{^{202}\text{Tl}}$ $^{202}\text{Tl}$	$p, \alpha \text{ n}$ (1,53)	$p, \alpha 2 \text{ n}$ (8,27)	$p, \alpha 3 \text{ n}$ (15,63)

Значения порога реакций (-0, МэВ) взяты из работы /13/.

дов (+5%), интегрирования площади под фотопиками гамма-лучей при обработке спектров на ЗЕМ (+3%).

Приведенные результаты представляют кумулятивные выходы  $^{201}\text{Tl}$ ,  $^{200}\text{Tl}$  и  $^{202}\text{Tl}$  в реакциях типа  $(p, \text{xn})$ ,  $(p, \text{pxn})$ ,  $(p, \alpha \text{xn})$  (табл.2). Для  $^{201}\text{Tl}$  и  $^{200}\text{Tl}$  определяющий вклад дает реакция  $(p, \text{xn})$ , сечение которой в изученном интервале энергии (100±50 МэВ) на один-два порядка выше (несколько сот миллибарн), чем для двух других реакций (несколько десятков и единиц миллибарн), соответственно /I0, II, I2/.

Как видно из рис. 2, для каждого образца обогащенного свинца выходы  $^{201}\text{Tl}$  и  $^{200}\text{Tl}$  в энергетических интервалах, соответствующих ядерным реакциям, приводящим к их образованию, имеют близкие величины. Так, в точках максимума выходы  $^{201}\text{Tl}$  из  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  и  $^{206}\text{Pb}$ , равны соответственно 1,3; 1,6 и 2,1 мКи/мкА-ч.г/см<sup>2</sup>, а выходы  $^{200}\text{Tl}$  - 1,0; 1,4 и 1,9 мКи/мкА-ч.г/см<sup>2</sup>.

Что касается  $^{202}\text{Tl}$ , то его выход из  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  и  $^{206}\text{Pb}$  равен 0,007-0,017 мКи/мкА-ч.г/см<sup>2</sup> по всей исследованной энергетической области. Относительно низкий выход этого нуклида можно объяснить тем, что он получается в результате реакций  $(p, \text{pxn})$  и  $(p, \alpha \text{xn})$  (табл.2).

В таблице 3 приведены интервалы энергий протонов (и соответствующие им толщины свинца), оптимальные по нашим оценкам для наработки

Таблица 3. Выход и относительное содержание радионуклидов таллия в толстых мишенях разделенных изотопов свинца при облучении протонами с начальной энергией 100 МэВ/(на 33 часа после конца облучения)

Мишень (г/см <sup>2</sup> )	$E_p$ , МэВ	мКи/мкА-ч		
		$^{201}\text{Tl}$	$^{200}\text{Tl}$	$^{202}\text{Tl}$
$^{208}\text{Pb}$ (1,8)	76+68	1,5 (87,0%)	0,21 (12,2%)	0,014 (0,8%)
$^{207}\text{Pb}$ (2,4)	68+57	3,0 (88,9%)	0,35 (10,4%)	0,023 (0,7%)
$^{206}\text{Pb}$ (1,5)	57+49	3,5 (89,0%)	0,42 (10,6%)	0,016 (0,4%)
$^{208}\text{Pb}$ $^{207}\text{Pb}^+$ $^{206}\text{Pb}^+$ (5,7)	76+49	8,0 (88,6%)	0,98 (10,8%)	0,053 (0,6%)

$^{201}\text{Tl}$  в мишенях из обогащенного свинца. В этих интервалах относительно высокие выходы  $^{201}\text{Tl}$  достигаются при минимальных загрязнениях  $^{200}\text{Tl}$ . Выход  $^{200}\text{Tl}$  из  $^{206}\text{Pb}$ , облученного протонами с энергией от 57 до 49 МэВ, оказался почти в 3 раза выше, чем наблюдавшийся ранее <sup>6/</sup>. Наиболее вероятно, что этот эффект связан с условиями облучения в этих экспериментах: на толстую мишень падал неколлимированный пучок протонов с энергией 100 МэВ, площадь поперечного сечения которого была больше площади, перпендикулярной к пучку поверхности мишени. В данном случае нельзя исключить облучение глубоких слоев мишени протонами с начальной или близкой к ней энергией. Правильность предположения подтверждается результатами облучения на ЛУ-100 стопки фольг  $^{206}\text{Pb}$  протонами с начальной энергией 73 МэВ. Активность  $^{200}\text{Tl}$  в препарате радиоталина, полученном в более широком диапазоне энергий - от 65 до 50 МэВ - была  $4,5 \pm 0,5\%$ , что соответствовало ранее полученным величинам <sup>6/</sup>. Очевидно, что облучение трехслойной мишени из свинца-208, 207 и 206 коллимированным пучком протонов с энергией ~76 МэВ и уменьшение примесей более легких изотопов свинца (до 0,5% и ниже) в свинце, обогащенном изотопами  $^{208}\text{Pb}$  и  $^{207}\text{Pb}$ , позволит вдвое поднять выход  $^{201}\text{Tl}$ , по сравнению с мишенью  $^{206}\text{Pb}$  <sup>6/</sup>, и оставить примесь  $^{200}\text{Tl} + ^{202}\text{Tl}$  на уровне  $4 \pm 1\%$ .

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

#### Литература

1. Lebowitz E., et al. J.Nucl.Med., 1975, 16, p.151, 156.
2. Kawana M., Krizek H., Porter J. et al. J.Nucl.Med., 1970, 11, p. 330.
3. Comastra D.D. Ind.Research Developm. 1981, Sept., p. 119.
4. Cyclotron Facilities with Radionuclide Production Programmes in Member States, IAEA, Jan., 1983, Vienna.
5. Lagunas-Solar M.C. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1983, NS-30, p.1805
6. Зайцева Н.Г. и др. ОИЯИ, Р6-85-254, Дубна, 1985.
7. Toballem J., Lavaus St.-Genies, Laveque L., CEA-N,1466(1),1971.
8. Пучеров Н.М., Романовский С.В., Чеснокова Т.Р. Таблицы массовой тормозной способности и пробегов заряженных частиц с энергией 1-100 МэВ, "Наукова думка", Киев, 1975.

9. Гошч П.М. и др. В кн.: "Материалы совещания по программированию и математическим методам решения физических задач", ОИЯИ Л-10, II-II264, Дубна, 1978, с. 330.
10. Bell R.E., Skaragard H.M., Can.J.Phys., 1956, 34, p. 745.
11. Jackson J.D. Can.J.Phys., 1956, 34, p. 767.
12. Rimbot R., Lefort M. J.Physique, 1966, 7/8, p. 385.
13. Lagunas-Solar M.C., Little P.S., Jungeman J.A. Int.J.Appl. Rad.Isotopes, 1981, 32, p. 817.

Рукопись поступила в издательский отдел  
10 ноября 1985 года.