

PRODUCTION PAR CYCLOTRON DE GAZ RADIOACTIFS À PARTIR DE CIBLES GAZEUSES: INHOMOGÉNÉITÉ DE L'ACTIVITÉ DANS LA CIBLE - DÉBIT OPTIMUM DU GAZ VECTEUR - SECTIONS EFFICACES

JEAN-MARIE PETERS*, GUY DEL FIORE†, LINO QUAGLIA‡, JEAN-CLAUDE DEPRESSEUX§ and PIERRE BARTSCH+

Centre de Recherches du Cyclotron, Université de Liège, Sart Tilman B 30, B-4000 Liège, Belgique

Reçu 18 Juin 1979

When short-lived radioactive gases are produced by cyclotron-irradiated gaseous targets, the yield of activity, at the site of delivery, depends on the flow rate in the gas-carrying line.

The authors improve a preliminarily published previous single model by the introduction of a supplementary hypothesis which takes into account the inhomogeneity of the activity in the gaseous target.

By substituting the NTP volume of the gas in the irradiation cell V_c by a visible volume V_a depending on the flow rate and expressed by $V_a = V_\infty + (V_0 - V_\infty) \exp(-kD_p)$, they derive the following general expression for the optimum flow rate D which gives a maximum yield of production.

$D^2 - bD - bc - D^2 ak \exp(-kD) - ab \exp(-kD) = 0$, $a = \lambda(V_0 - V_\infty)$, $b = \lambda V_r$, $c = \lambda V_\infty$, λ = the decay constant of the radionuclide produced, V_r the inner volume of the gas-carrying line.

The unknown parameters V_r , V_a , V_0 , V_∞ , and k can be determined experimentally.

The authors also suggest a new method for the determination of experimental cross sections with their gaseous target with the help of the following expression:

$$\bar{\sigma} = A(\lambda V_a + D) \exp(\lambda T_p) / \lambda F n R,$$

where A is the saturation activity at the site of delivery; F , the intensity of charged particles; n , the atoms target concentration; R , the range of the particles; T_p , the transit time in the carrying line.

The method is concretely applied to the production of 15-oxygen, 13-nitrogen and 11-carbon and the average cross sections are determined in precise energy ranges for the nuclear reactions $^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$, $^{12}\text{C}(d, n)^{13}\text{N}$ and $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$.

1. Introduction

1.1. APPROCHE RAPIDE DU DÉBIT OPTIMUM

Dans un travail récent¹⁾, les auteurs ont montré que, préalablement à la production de gaz radioactifs par cyclotron à partir de cibles gazeuses en circuit ouvert, il était facile de déterminer rapidement la valeur approchée, à mieux de 15% près, du débit à imposer au gaz vecteur pour obtenir le meilleur rendement radioactif à l'endroit de son utilisation.

Le débit correspondant au rendement maximum au point de distribution s'exprime par la relation:

$$D = \frac{1}{2} [\lambda V_r + (\lambda^2 V_r^2 + 4\lambda^2 V_r V_c)^{1/2}]$$

avec $V_r = T_p D_p$ où T_p (s) est le temps de transit du gaz dans la ligne de transport pour un débit D_p (ml/s) quelconque mesuré;

V_r (cm³): le volume de la ligne de transport calculé par la relation ci-dessus;

V_c (cm³): le volume (NTP) de gaz dans la cellule d'irradiation;

λ (s⁻¹): la constante radioactive de l'isotope produit.

L'utilisation de cette formule ne nécessite qu'une seule détermination expérimentale, facilement accessible, du temps T_p à un débit quelconque, à partir d'une courbe enregistrée de montée de l'activité jusqu'à la saturation au point de distribution du gaz.

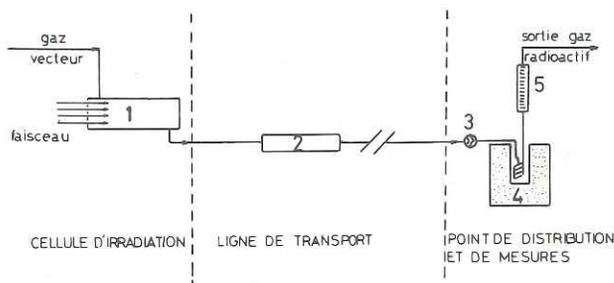


Fig. 1. Représentation schématique d'un système de production d'un gaz radioactif avec un cyclotron. 1. Cellule d'irradiation du gaz. 2. Fours et pièges. 3. Vanne à pointe. 4. Chambre d'ionisation pour la mesure du rendement. 5. Débitmètre (pression atmosphérique).

* Maître de Recherches FNRS.

† Institut Provincial E. Malvoz.

‡ Chercheur qualifié FNRS.

§ Chargé de recherches FNRS.

+ Spécialiste des hôpitaux.

1.2. DESCRIPTION DU PREMIER MODÈLE SIMPLE

1.2.1. Schéma du dispositif d'irradiation

Le dispositif d'irradiation et de transport des gaz radioactifs est schématisé à la fig. 1.

1.2.2. Hypothèses

- (1) Les pertes d'activité par absorption sont négligeables.
- (2) La fraction de l'activité totale de la cible, extraite par unité de temps, vaut D/V_c .
- (3) Le temps de transit dans la ligne de transport peut être mesuré.
- (4) Le point de distribution et celui des mesures sont confondus.
- (5) Une seule réaction nucléaire est responsable de l'activité.

1.2.3. Relations

Rendement (mCi/ml):

$$A(t) = \frac{\lambda F n \bar{\sigma} R}{(\lambda V_c + D_p) 3,7 \times 10^7} \times \left\{ 1 - \exp \left[- \left(\lambda + \frac{D_p}{V_c} \right) t \right] \right\} \exp(-\lambda T_p). \quad (1)$$

Rendement à saturation:

$$A_s = \frac{\lambda F n \bar{\sigma} R}{(\lambda V_c + D_p) 3,7 \times 10^7} \exp(-\lambda T_p). \quad (2)$$

Volume de la ligne de transport:

$$V_r = T_p D_p. \quad (3)$$

Débit optimum:

$$D = \frac{1}{2} [\lambda V_r + (\lambda^2 V_r^2 + 4 \lambda^2 V_r V_c)^{1/2}], \quad (4)$$

F : intensité des particules chargées en s^{-1} ; n : concentration des atomes cibles en mg^{-1} ; $\bar{\sigma}$: section efficace moyenne de la réaction en cm^2 , dans l'intervalle d'énergies des particules chargées traversant la cible gazeuse; R : parcours des particules chargées dans le matériau cible en cm; t : durée de l'irradiation en s.

2. Amélioration du modèle initial

2.1. JUSTIFICATION

Les divers phénomènes qui se déroulent dans la cible gazeuse sous bombardement de particules chargées conduisent nécessairement à un gradient complexe d'activités, lui-même perturbé par le sillage du gaz vecteur. La fraction de l'activité extraite par unité de temps de la cellule d'irradiation s'écarte sans aucun doute de la valeur théorique D/V_c ,

laquelle suppose une homogénéisation instantanée du contenu gazeux. Si l'on désigne par A_s^c l'activité à saturation dans la cellule d'irradiation, le modèle simplifié prévoyait une extraction théorique égale à $A_s^c D/V_c$ par unité de temps. Dans la réalité, on extrait une activité tantôt plus grande, tantôt plus petite que cette valeur théorique.

2.2. NOUVELLE HYPOTHÈSE

Cette nouvelle hypothèse repose sur l'observation suivante: l'activité à saturation dans la cellule A_s^c et la fraction d'extraction $f = D_p/V_a$ sont respectivement différentes des valeurs théoriques A_s^c et D_p/V_c . Cela revient en fait à introduire la notion d'un volume apparent V_a différent de V_c et fonction de D_p . V_a doit diminuer lorsque le débit augmente et tendre vers une valeur constante lorsque le débit devient très grand. La fraction d'extraction est donc soumise à des conditions aux limites:

$$f = \frac{D_p}{V_a} \begin{cases} f = 0 \text{ et } V_a = V_0 \text{ pour } D_p = 0 \\ f = f_\infty = e^{t_0} \text{ et } V_a = V_\infty \text{ pour } D_p = \infty. \end{cases}$$

Fondamentalement, la nouvelle hypothèse revient à substituer à V_c une fonction $V_a(D_p)$. Parmi les fonctions pouvant vérifier les conditions aux limites, la plus simple est $V_a = \alpha + \beta e^{-\gamma D_p}$, soit en introduisant les conditions aux limites:

$$V_a = V_\infty + (V_0 - V_\infty) \exp(-k D_p). \quad (5)$$

On verra que ce modèle rend très bien compte des résultats expérimentaux permettant de tracer la courbe V_a en fonction de D_p (cfr. 4.4).

3. Expression du débit optimum dans le modèle amélioré

3.1. RENDEMENT AU POINT DE DISTRIBUTION DU GAZ

En substituant à V_c , dans l'éq. (1), V_a qui traduit la nouvelle hypothèse, on obtient l'expression du rendement d'activité au point de distribution.

$$A(t) = \frac{\lambda F n \bar{\sigma} R}{(\lambda V_a + D_p) 3,7 \times 10^7} \times \left\{ 1 - \exp \left[- \left(\lambda + \frac{D_p}{V_a} \right) t \right] \right\} \exp(-\lambda T_p). \quad (6)$$

Le rendement constant à saturation, ($t = \infty$), s'inscrit alors en remplaçant V_a par l'expression (5):

$$A_s = \frac{K \exp(-\lambda V_r/D_p)}{\lambda V_\infty + \lambda (V_0 - V_\infty) \exp(-k D_p) + D_p} \quad (7)$$

avec

$$K = \lambda F n \bar{\sigma} R / 3,7 \times 10^7 \quad \text{et} \quad V_r = T_p D_p.$$

3.2. EXPRESSION GÉNÉRALE DU DÉBIT OPTIMUM D

La fonction exprimée par l'éq. (7) admet un maximum que l'on détermine aisément en annulant la dérivée première dA/dD_p et qui livre la condition :

$$D^2 [1 - \lambda k (V_0 - V_\infty) \exp(-kD)] - \lambda V_r D - \lambda^2 V_r V_\infty - \lambda^2 V_r (V_0 - V_\infty) \exp(-kD) = 0$$

qui est l'expression générale du débit optimum, ou encore :

$$D^2 - bD - bc - D^2 ak \exp(-kD) - ab \exp(-kD) = 0 \tag{8}$$

avec : $a = \lambda (V_0 - V_\infty)$, $b = \lambda V_r$, $c = \lambda V_\infty$.

3.2.1. Cas particulier - λ grand : application à l'oxygène-15

Lorsque la constante radioactive est grande, comme c'est le cas pour l'oxygène-15 qui décroît très vite, le débit optimum est grand. L'utilisation du premier modèle nous a fourni la valeur de $7,2 \text{ ml} \cdot \text{s}^{-1}$ (cfr. tableau 1). Les termes exponentiels de l'équation générale, éq. (8), peuvent être négligés et l'expression du débit optimum se réduit à :

$$D^2 - bD - bc = 0 \quad \text{avec } b = \lambda V_r, \quad c = \lambda V_\infty, \tag{9}$$

dont la racine physiquement significative est :

$$D (\text{optimum}) = \frac{1}{2} [\lambda V_r + (\lambda V_r^2 + 4 \lambda^2 V_r V_\infty)^{1/2}], \tag{10}$$

V_r et V_∞ sont accessibles par l'expérience.

3.2.2. Cas général - λ quelconque applicable à l'azote-13 et au carbone-11

Dans le cas général, la fonction transcendante no. (8) doit être résolue par une méthode d'approximations successives; c'est celle de Newton-Raphson qui a été utilisée dans ce travail (2), étant donné que la fonction est facilement dérivable et que l'on connaît, par l'exploitation du modèle simplifié, une valeur approchée d'une des racines (cfr. tableau 1).

4. Détermination des constantes

Le modèle amélioré exige un plus grand nombre d'expériences pour déterminer les nouvelles constantes V_a , V_0 , V_∞ et k .

Si l'on pose que le temps d'irradiation $t = T_M - T_p$ où T_M représente le moment où une mesure est effectuée dans la chambre d'ionisation au point de distribution, l'éq. (6) qui exprime le rendement

TABLEAU I

Comparaison entre Débit optimum calculé et Débit optimum expérimental. I. Modèle simple (1). II. Modèle amélioré (présent travail).

	Oxygène 15 (O ₂)	Azote 13 (N ₂)	Carbone 11 (CO ₂)
I. Modèle simple			
λ (s ⁻¹)	$5,589 \times 10^{-3}$	$1,155 \times 10^{-3}$	$5,775 \times 10^{-4}$
V_0 (cm ³ NTP)	280	304	642
$V_r = T_p D$ (cm ³)	1063 ± 8	739 ± 17	1115 ± 25
Débit calculé par l'éq. (4) (ml · s ⁻¹)	7,2	1,1	0,91
Débit expérimental (ml · s ⁻¹)	8	1,2	0,8
Ecart à la valeur expérimentale	10%	7%	13%
II. Modèle amélioré			
λ (s ⁻¹)	$5,589 \times 10^{-3}$	$1,155 \times 10^{-3}$	$5,775 \times 10^{-4}$
V_0 (cm ³ NTP)		258	276
V_∞ (cm ³ NTP)	426	101,5	129,5
k		0,947	1,337
V_r (cm ³ NTP)	1097 ± 5	887 ± 18	1179 ± 26
Débit optimum calculé (ml · s ⁻¹) par l'éq. (8)	7,96 (10)	1,233 (8)	0,8003 (8)
Débit optimum expérimental (ml · s ⁻¹)	8	1,2	0,8
Ecart à la valeur expérimentale	0,5%	2,5%	0%

s'écrira :

$$A(t) = A_s \{1 - k' \exp [-(\lambda + D_p/V_a) T_M]\} \tag{11}$$

avec : rendement à saturation

$$A_s = \frac{\lambda F n \bar{\sigma} R}{\lambda V_a + D_p} \exp(-\lambda T_p) \tag{12}$$

et

$$k' = \exp(\lambda + D_p/V_a) T_p. \tag{13}$$

4.1. DÉTERMINATION DE V_a , T_p ET V_r

V_a et T_p peuvent être déterminés soit à partir de la courbe de croissance de la concentration radioactive enregistrée au point de distribution pour un débit D_p quelconque, soit à partir de la courbe de décroissance après rupture du faisceau. Les développements étant proches avec l'une ou l'autre courbe, seule l'exploitation de la première sera exposée ci-après.

Le rapport $A(t)/A_s$ peut être calculé pour tous les points de la courbe de croissance (fig. 2), ce qui permet de tirer les valeurs du facteur de saturation :

$$\{1 - k' \exp [-(\lambda + D_p/V_a) T_M]\}$$

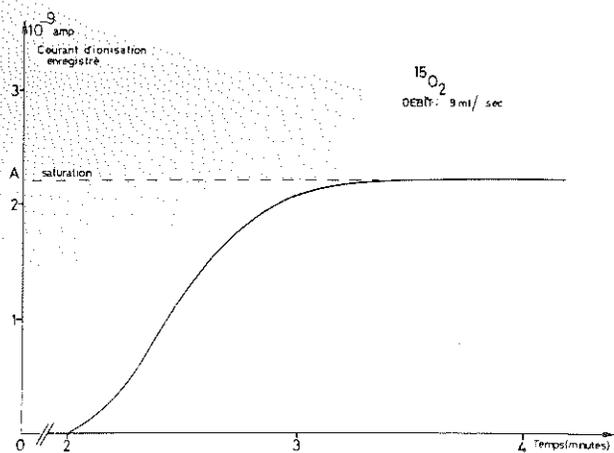


Fig. 2. Courant de la chambre d'ionisation au point de distribution du gaz radioactif en fonction du temps - exemple de courbe de croissance de l'activité pour la détermination de V_a , T_p et V_r (voir 4.1.).

et par conséquent,

$$Z = k' \exp[-(\lambda + D_p/V_a) T_M] \quad (14)$$

pour n'importe quelle valeur de T_M .

$$\ln Z = \ln k' - (\lambda + D_p/V_a) T_M = b + mx$$

est l'équation d'une droite de régression linéaire au départ des valeurs $x_i = T_M$ et $y_i = \ln Z$. On évalue le coefficient de corrélation, la pente de la droite $m = -(\lambda + D_p/V_a)$ et l'ordonnée à l'origine $b = \ln k' = (\lambda + D_p/V_a) T_p = -m T_p$. On trouve aisément V_a et $T_p = -b/m$. On calcule ensuite $V_r = T_p D_p$.

4.2. DÉTERMINATION DE V_∞

Pour les grands débits, l'éq. (5) se réduit à $V_a = V_\infty$. Il suffit de déterminer V_a par la méthode exposée en (4.1) pour des valeurs élevées de débit jusqu'à ce que V_a ne varie plus. On se trouve alors dans la région où $V_a = V_\infty$ (cfr. aussi fig. 3).

4.3. DÉTERMINATION DE V_0 ET k

L'éq. (5) peut s'écrire :

$$V_a - V_\infty = (V_0 - V_\infty) \exp(-k D_p),$$

$$\ln(V_a - V_\infty) = \ln(V_0 - V_\infty) - k D_p.$$

C'est l'équation d'une droite de pente égale à $-k$ et d'ordonnée à l'origine $\ln(V_0 - V_\infty)$, d'où k et V_0 (cfr. aussi fig. 3).

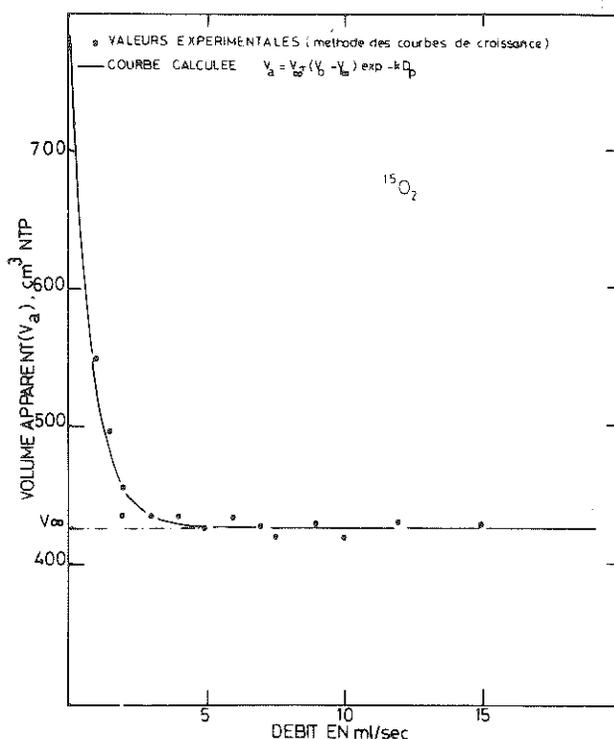


Fig. 3. Volume apparent V_a en fonction du débit.

4.4. JUSTIFICATION DE L'EMPOI DE L'EQUATION

$$V_a = V_\infty + (V_0 - V_\infty) \exp(-k D_p) \text{ POUR TRADUIRE L'HYPOTHESE NOUVELLE LIÉE AU MODELE}$$

La fig. 3 reprend les valeurs expérimentales, déterminées par les courbes de croissance des activités (cfr. 4.1) et la courbe $V_a = f(D_p)$ correspondant à l'expression (5). L'accord justifie l'emploi de cette dernière.

5. Application

La méthode a été appliquée à la production d'oxygène-15, d'azote-13 et de carbone-11. Le tableau 1 reprend les valeurs des différents paramètres pour $^{15}\text{O}_2$, $^{13}\text{N}_2$ et $^{11}\text{CO}_2$. Les conditions d'irradiation étant les mêmes que celles adoptées dans une précédente publication exposant la méthode du « modèle simple », elles ne figurent plus dans le tableau actuel (1). Par contre, on rappelle les résultats dérivant de l'application du modèle simple afin de permettre la comparaison.

6. Sections efficaces

Les sections efficaces des réactions $^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$, $^{12}\text{C}(d, n)^{13}\text{N}$, $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$ n'ont guère été mesurées, et il n'existe aucune théorie satisfaisante des réactions nucléaires qui permette de les calculer.

TABLEAU 2
Sections efficaces moyennes.

Isotope produit	Réaction nucléaire	Domaine d'énergie (MeV)	Section efficace moyenne (mbarns)	
			Présent travail	Réfs.
Oxygène-15	$^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$	0-6,3	233	
		0,55-2,95		110 ³⁾
		0,6-3		74 ⁴⁾
		0,6-6,2		146 ⁴⁾
Azote-13	$^{12}\text{C}(d, n)^{13}\text{N}$	2,14-5,38	76	76 ⁵⁾
		0-6,3		
		0-6,3		67 ⁶⁾
		0-8		77,5 ⁶⁾
		0-6,3		70 ⁷⁾
Carbone-11	$^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$	0-8	78	
		0-8		59 ⁸⁾
		0-8		
		0-10		61 ⁹⁾

Leur détermination expérimentale reste donc primordiale. De l'expression (12) du rendement à saturation, on peut retirer une valeur de la section efficace moyenne,

$$\bar{\sigma} = [A(\lambda V_a + D)/\lambda F n R] \exp(\lambda T_p), \quad (15)$$

$$F = 6,3 \times 10^{12} I/Z$$

où I = courant de faisceau en μA , Z = nombre de charges élémentaires de la particule.

Pour autant que la mesure du courant puisse être faite avec précision, ce qui est assez facile à réaliser, alors les différents paramètres de l'éq. (15) seront connus à quelques pour-cent près. La cause principale d'erreur sera due à l'imprécision sur la valeur du parcours R (5-10% suivant le cas). Ceci nous fournit une méthode originale pour obtenir des sections efficaces moyennes à moins de 20%. L'utilisation d'une cible à volume variable conduira à un histogramme de la section efficace totale en fonction de l'énergie.

Dans ce travail, nous avons déterminé les sections efficaces moyennes reprises dans le tableau 2.

7. Conclusion

Le choix aveugle d'un débit gazeux dans un dispositif de fabrication en continu de gaz radioactifs par cyclotron conduira le plus souvent à des rendements médiocres. Le débit est un paramètre essentiel à contrôler. La théorie montre, en effet, qu'il y a une valeur optimum à laquelle correspond un maximum du rendement radioactif (mCi/ml) au

point de distribution du gaz. En nous appuyant sur un modèle simple, nous avons précédemment mis en évidence qu'il était aisé d'obtenir une valeur satisfaisante du meilleur débit au terme d'une seule expérience.

Dans ce travail, le modèle a été amélioré pour tenir compte de l'inhomogénéité de l'activité dans la cellule d'irradiation, dont la répercussion sur le facteur d'extraction peut être importante.

Il en résulte une fonction du débit qui permet de supprimer pratiquement l'écart entre le débit optimum dérivé du modèle et celui recherché expérimentalement. Cette méthode est évidemment beaucoup plus longue et nécessite de déterminer plusieurs paramètres par voie expérimentale. Par contre, elle confirme la validité des hypothèses liées au modèle et justifie en outre l'emploi du modèle simplifié pour une évaluation rapide. Le remarquable accord obtenu nous autorise à suggérer une équation et un procédé pour calculer les sections efficaces par irradiation de cibles gazeuses.

Nous les avons appliqués à la détermination des sections efficaces moyennes pour les réactions $^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$, $^{12}\text{C}(d, n)^{13}\text{N}$, $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$ dans les domaines d'énergie convenant à notre dispositif de production de gaz radioactifs.

Nous remercions le Fonds de la Recherche Scientifique Médicale (F.R.S.M.) et le Gouvernement Provincial de Liège pour l'aide accordée à notre équipe.

Notre gratitude va également à Mademoiselle N. Walch pour sa précieuse collaboration technique.

References

- 1) G. Del Fiore, J. C. Depresseux, P. Bartsch, L. Quaglia and J. M. Peters, Nucl. Instr. and Meth., 163 (1979) 479.
- 2) H. Margenau and G. M. Murphy, *The mathematics of physics and chemistry* (Van Nostrand, London, 1956) p. 492.
- 3) K. Wohlleben and E. Schuster, Radiochim. Acta 12 (1969) 75.
- 4) H. V. Ruiz and A. P. Wolf, Radiochim. Acta 24 (1977) 65.
- 5) B. W. Wieland, Ph. D. Thesis, The Ohio State University (1973).
- 6) N. N. Krasnov, P. P. Dmitriyev, S. P. Dmitriyeva, I. O. Konstantinov and G. A. Molin, Energie atomique 27 (1969) 48.
- 7) O. D. Brill and L. V. Sumin, Sov. J. Atom. Energy 7 (1961) 856.
- 8) T. Nozaki, T. Okuo, H. Akutsu and M. Furukawa, Bull. Chem. Soc. Japan 39 (1966) 2685.
- 9) N. N. Krasnov, P. P. Dmitriyev, S. P. Dmitriyeva, I. O. Konstantinov and G. A. Molin; *Uses of cyclotrons in chemistry, metallurgy and biology*, ed., C. B. Amphlett (Butterworths, London, 1970) p. 341.