

31
1979

Nuclear Instrumentation and Methods
(sous presse)

DETERMINATION DU DEBIT OPTIMUM POUR LA PRODUCTION PAR CYCLOTRON DE

GAZ RADIOACTIFS A PARTIR DE CIBLES GAZEUSES

Guy DEL FIORE (+), Jean-Claude DEPRESSEUX (++) , Pierre BARTSCH (+++) ,
Lino QUAGLIA (++++), Jean-Marie PETERS (+++++).

Centre de Recherches du Cyclotron - Université de Liège -
Sart Tilman B 30 - B 4000 LIEGE, BELGIQUE.

- (+) Institut Provincial E. Malvoz
- (++) Chargé de Recherche F.R.S.M.
- (+++) Spécialiste des Hôpitaux.
- (++++) Chercheur qualifié F.N.R.S.
- (+++++) Maître de Recherche F.N.R.S.
-Directeur de Recherche.

SUMMARY

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 present a single model which allows to compute the flow rate D giving a maximum yield of production.

The following formula is used :

$$D = \frac{1}{2} \left[\lambda V_r + \sqrt{\lambda^2 V_r^2 + 4 \lambda^2 V_r V_c} \right]$$

where λ is the decay constant of the produced radionuclide, V_c the volume of gas in the target, and V_r the inner volume of the gas carrying line.

The only unknown parameter V_r can be derived from a single curve of growing of the activity at a trial flow rate.

The method is concretely applied to the production of 15-oxygen, 13-nitrogen and 11-carbon.

1. INTRODUCTION

Dans la production par cyclotron de gaz radioactifs de courte vie, en circuit ouvert, au départ de cibles gazeuses intervient un grand nombre de paramètres et de phénomènes qui peuvent influencer le rendement au point d'utilisation, généralement éloigné de plusieurs dizaines de mètres du module d'irradiation.

Il y a différentes règles à observer lors de la construction d'un ensemble complet destiné à fabriquer et à dispenser les molécules simples gazeuses, dérivées de l'oxygène-15, de l'azote-13 et du carbone-11. Ces règles ont fait l'objet de recommandations par la plupart des auteurs qui décrivent leur dispositif (1, 2, 3, 4, 5 et 6). Elles portent le plus souvent sur la nature des matériaux utilisés, sur les volumes et dimensions des cellules d'irradiation et des pièges, sur le diamètre intérieur des conduits de gaz. Elles visent toutes à réduire les résistances à l'écoulement, la dilution des activités et les absorptions, à obtenir le maximum de concentration radioactive dans la cellule par le calcul des épaisseurs de cible juste nécessaires pour couvrir la partie utile de la courbe de section efficace de la réaction (élimination des contaminants). Certains auteurs se sont intéressés au rendement d'extraction des cibles.¹⁾

Par contre, le facteur le plus important, le débit gazeux, ne semble, à notre connaissance, avoir fait l'objet d'aucune

attention particulière. Pourtant, un choix aveugle du débit conduira, généralement, à de faibles rendements. Nous nous proposons de montrer comment, avec un minimum de paramètres facilement accessibles, on peut établir rapidement une corrélation entre le débit (ml/sec) et le rendement (micro-Ci/ml) au point d'utilisation du gaz radioactif.

2. MODELE

2.1. Représentation d'un système de production d'un gaz radioactif avec un cyclotron.

Le schéma est repris sur la figure no. 1.

Fig. 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 l'unité de temps, vaut D/V_c où D est le débit gazeux en ml/sec et V_c le volume du gaz cible en ml NTP.
3. Le temps de transit du gaz activé entre la sortie de la cellule d'irradiation et le point de distribution peut être déterminé.
4. Les endroits de mesure du rendement et de distribution du gaz sont confondus.
5. Une seule réaction nucléaire est responsable de l'activité.

3. THEORIE3.1. Expression de l'activité dans la cible en fonction du débit gazeux :

Dès que le faisceau de particules chargées est envoyé dans la cible, la vitesse d'accumulation des atomes activés est la différence entre la vitesse de formation et la vitesse de disparition. Les atomes radioactifs disparaissent de deux manières : par décroissance radioactive et par élimination sous l'effet du débit constant. Pour une épaisseur considérée Δx de gaz sous irradiation, la vitesse d'accumulation se traduit par :

$$\frac{dN}{dt} = F n \sigma \Delta x - N \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) \quad (1)$$

- F : intensité des particules chargées en sec^{-1}
 n : concentration des atomes cibles en mg^{-1}
 σ : section efficace de la réaction en cm^2
 Δx : épaisseur de la couche de gaz considérée en mg.cm^{-2}
 λ : constante radioactive du radioisotope formé en sec^{-1}
 D : débit du gaz en ml.sec^{-1} (760 mm Hg - T° ordinaire)
 V_c : volume de gaz dans la cellule d'irradiation en cm^3 (NTP).

La solution de l'équation linéaire du premier ordre (1) est de la

forme :

$$N = C(t) \exp - \left[\lambda + \frac{D}{V_c} \right] t$$

$$\text{avec : } C(t) = \frac{F n \sigma \Delta x \exp - \left[\lambda + \frac{D}{Vc} \right] t}{\lambda + \frac{D}{Vc}} + C$$

$$\text{d'où } N = \frac{F n \sigma \Delta x}{\lambda + \frac{D}{Vc}} + C \exp - \left[\lambda + \frac{D}{Vc} \right] t$$

En introduisant la condition limite $N = 0$ pour $t = 0$, on trouve la valeur de la constante :

$$C = - \frac{F n \sigma \Delta x}{\lambda + \frac{D}{Vc}}$$

$$\text{Il vient : } N = \frac{F n \sigma \Delta x}{\lambda + \frac{D}{Vc}} \left[1 - \exp - \left(\lambda + \frac{D}{Vc} \right) t \right] \quad (2)$$

L'activité ΔA dans la couche Δx est par définition $\Delta A = N \lambda$, exprimée en désintégrations par seconde.

La distribution ou gradient d'activité sur l'épaisseur de la cible gazeuse est donnée par :

$$\frac{dA}{dx} = \frac{N \lambda}{\Delta x} = \frac{\lambda F n \sigma}{\lambda + \frac{D}{Vc}} \left[1 - \exp - \left(\lambda + \frac{D}{Vc} \right) t \right]$$

L'activité totale dans la cellule est obtenue en intégrant cette relation sur toute l'épaisseur de la cible :

$$A_c = \frac{\lambda F n}{\lambda + \frac{D}{V_c}} \left[1 - \exp - \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) t \right] \int_0^{x=R} \sigma(x) dx \quad (3)$$

avec R : parcours des particules chargées dans le matériau cible.

En effet : $\sigma(x) = 0$ pour $x \gg R$

n peut être considéré comme une constante, ainsi que

$$F = 6,3 \cdot 10^{12} \frac{I}{Z} \quad \text{où } I \text{ est le courant du faisceau en } \mu\text{A}$$

et Z le nombre de charges élémentaires de la particule.

L'intégrale dans l'équation (3) est une constante et l'on peut écrire :

$$\int_0^{x=R} \sigma(x) dx = \bar{\sigma} R$$

$\bar{\sigma}$ est la valeur moyenne de la section efficace de la réaction nucléaire dans l'intervalle d'énergie des particules chargées traversant la cible gazeuse.

$$A_c = \frac{\lambda F n}{\lambda + \frac{D}{V_c}} \left[1 - \exp - \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) t \right] \bar{\sigma} R \quad (4)$$

3.2. Expression de l'activité extraite de la cellule par unité de temps

Selon l'hypothèse No. 2, la fraction $\frac{D}{V_c}$ de l'activité totale A_c représente l'activité extraite par unité de temps. Elle est donnée par la relation :

$$A_e = \frac{\lambda 6,3 \cdot 10^{12} I n \bar{\sigma} R}{z \left(\lambda - \frac{D}{V_c} \right)} \left[1 - \exp - \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) t \right] \cdot \frac{D}{V_c} \quad (5)$$

3.3. Expression de l'activité débitée par unité de temps et du rendement au point de distribution /

En désignant par T le temps de parcours du gaz radioactif depuis la sortie de la cellule jusqu'à l'endroit de sa distribution, le débit d'activité A_d , exprimé en $\text{mCi} \cdot \text{sec}^{-1}$, sera :

$$A_d = \frac{\lambda 6,3 \cdot 10^{12} I n \bar{\sigma} R \cdot D}{z \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) \cdot 3,7 \cdot 10^7 V_c} \left[1 - \exp - \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) t \right] \cdot \exp - \lambda T_p \quad (6)$$

Le rendement recherché, ou concentration radioactive, exprimé en $\text{mCi} \cdot \text{ml}^{-1}$ vaut $A(b) = \frac{A_d}{D}$

$$A(t) = \frac{Ad}{D} = \frac{\lambda 6,3 \cdot 10^{12} \text{ I n } \bar{\sigma} R}{Z \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) \cdot V_c \cdot 3,7 \cdot 10^7} \left[1 - \exp - \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) t \right] \exp - \lambda T_p \quad (7)$$

$$= \frac{\lambda F n \bar{\sigma} R}{(\lambda V_c + D) \cdot 3,7 \cdot 10^7} \left[1 - \exp - \left(\lambda + \frac{D}{V_c} \right) t \right] \exp - \lambda T_p \quad (8)$$

A l'équilibre de saturation, c'est-à-dire pour $t \rightarrow \infty$, le rendement A est constant. L'équation (8) donne :

$$A = \frac{\lambda F n \bar{\sigma} R}{(\lambda V_c + D) \cdot 3,7 \cdot 10^7} \cdot \exp - \lambda T_p \quad (9)$$

Or, le temps de transit du gaz (T_p) est le rapport d'un volume V_r au débit D .

$$A = \frac{\lambda F n \bar{\sigma} R}{(\lambda V_c + D) \cdot 3,7 \cdot 10^7} \cdot \exp - \frac{\lambda V_r}{D} \quad (10)$$

En première approximation, V_r est le volume géométrique de la ligne de transport du gaz.

3.4. Débit à appliquer pour obtenir un rendement à saturation maximum :

L'expression (10) du rendement à saturation passe par un maximum en fonction du débit D. L'annulation de la dérivée première conduit à une équation du second degré en D.

$D^2 - \lambda V_r D - \lambda^2 V_r V_c = 0$ qui admet deux racines dont la seule physiquement significative est :

$$D = \frac{\lambda V_r + \sqrt{\lambda^2 V_r^2 + 4 \lambda^2 V_r V_c}}{2} \quad (11)$$

C'est la valeur recherchée du débit à imposer au gaz.

4. PREMIERE APPROCHE DE D

APPROXIMATION : soit V_r = volume géométrique de la ligne de transport.

λ est connu, V_c est connu, V_r est mesuré géométriquement : c'est la somme des volumes des différentes parties de la ligne de transport. L'équation (11) donne une valeur de débit proche du débit optimum à adopter (et évite de faire un choix aveugle). Dans cette approximation, D peut être estimé sans faire la moindre expérience.

5. DEUXIEME APPROCHE DE D (par la détermination expérimentale du temps de parcours T_p)

V_r n'est, en réalité, pas exactement le volume géométrique de la ligne de transport. La valeur correcte de ce volume, à introduire dans l'équation (11), est $V_r = T_p \cdot D$. D étant une mesure du débit, il faut donc connaître T_p à ce débit. On accède aisément à ce temps de transit du gaz en enregistrant la courbe qui représente la montée de l'activité dans la chambre d'ionisation depuis l'instant $t = 0$ où le faisceau tombe sur la cible jusqu'au plateau de saturation. La figure No. 2 en donne un exemple. Celui-ci se rapporte à l'oxygène-15, le débit choisi a été calculé par la méthode de première approximation. Le temps T_p est obtenu par extrapolation comme il est indiqué sur le graphique (Figure No. 2).

Fig 2

6. APPLICATION

La méthode a été appliquée à la production d'oxygène-15 (formes moléculaires : O_2 , CO , CO_2), d'azote-13 (forme moléculaire : N_2) et de carbone-11 (formes moléculaires : CO et CO_2).

Le tableau I reprend les résultats des débits optimums, donnés par cette méthode, en comparaison des débits expérimentaux qui correspondent aux meilleurs rendements déterminés en traçant les courbes "rendement/débit". Ces courbes ont été obtenues en recherchant le

maximum dans une gamme de débits proches de celui calculé en première approximation par l'équation (11).

	Oxygène-15		azote-13		carbone-11	
	14	15	12	13	14	11
Reaction nucléaire	N(d,n) 0		C(d,n) N		N(p, α) C	
Gaz irradié	96% N ₂ , 4% O ₂		CO ₂		99,9% N ₂ , 0,1% O ₂	
Paramètres de l'irradiation						
- courant de cible (μ A)	10,5		20		15	
- énergie de la particule sur la cible (MeV)	6,3		6,3		8	
Pression dans la cellule d'irradiation (Kg.cm ⁻²)	0,54		0,68		0,53	
Four					CuO à 800°C	
Piège(s)	chaux sodée charbon actif silica-gel		Spirale Cu		Mg(ClO ₄) ₂	
Rendement optimum expérimental (mCi.cm ⁻³)	0,26		0,06		0,18	

Paramètres utilisés dans l'équation du débit (11)

λ (sec ⁻¹)	5,5887.10 ⁻³	1,155.10 ⁻³	5,775.10 ⁻⁴
Vc (cm ³ NTP)	280	304	642
Vr expérimental = Tp.D ³ (cm ³)	1097	887	1179
<u>Débit calculé par</u>			
l'équation (11) (ml.sec ⁻¹)	7,2	1,1	0,91
<u>Débit expérimental</u> (ml.sec ⁻¹)	8	1,2	0,8
Ecart à la valeur expérimentale 10 %		7 %	13 %

TABLEAU I

Conditions d'irradiation et comparaison entre le débit calculé par la présente méthode et le débit expérimental.

CONCLUSION

Le débit est un des facteurs les plus importants à maîtriser lors de la production par cyclotron et du transport de gaz radioactifs à vie courte.

Le débit optimum peut être approché à moins de 15 % en utilisant l'équation :

$$D = \frac{\lambda V_r + \sqrt{\lambda^2 V_r^2 + 4 \lambda^2 V_r V_c}}{2}$$

où V_r est obtenu à partir de la mesure du temps de transit du gaz dans la ligne de transport pour un débit quelconque ($V_r = T_p \cdot D$). Cette détermination n'exige qu'un seul enregistrement de l'activité dans une chambre d'ionisation en fonction du temps d'irradiation. Les écarts à la valeur expérimentale des débits optimums proviennent évidemment du modèle choisi et des hypothèses simplificatrices acceptées.

C'est l'hypothèse 2 qui, à notre avis, contribue le plus à l'écart observé entre les valeurs calculées et les valeurs expérimentales. En effet, la fraction réelle de l'activité totale extraite de la cible par unité de temps ne peut pas être $\frac{D}{V_c}$ mais bien $\frac{D}{V_a}$ où V_a est un volume apparent dont la valeur peut être plus grande ou plus petite que V_c .

En introduisant $\frac{D}{V_c}$, on admet que l'homogénéisation de l'activité

dans la cellule d'irradiation est instantanée. Cela n'est pas du tout évident étant donné le grand nombre de phénomènes qui interviennent lorsque le faisceau bombarde la cible gazeuse : distribution complexe de la pression et de la température, gradient d'activité $\frac{dA}{dx}$ dans l'axe du faisceau reflétant la fonction section efficace - énergie, répulsions de charge des molécules excitées, reculs et piégeage sur les parois, lignes préférentielles d'écoulement du gaz dans la cellule. Les expériences concernant un modèle plus raffiné sont en cours. Les résultats actuels permettent cependant de fixer le débit optimum avec une précision assez satisfaisante et, en tout état de cause, simplifient la recherche expérimentale de la valeur de ce paramètre.

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

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

BIBLIOGRAPHIE

1. J.C. CLARK, P.D. BUCKINGHAM - Short-lived radioactive gases for clinical use (Butterworth - London - 1975).
2. M.M. TER-POGOSSIAN - Amer. J. Roentgenol. Radium Therapy Nucl. Med. 96 (1966) 737.
3. N.A. DYSON, P. HUGH-JONES, G.R. NEWBERY, J.B. WEST - The preparation and use of oxygen-15 with particular reference to its value in the study of pulmonary malfunction. 2nd U.N. Int. Conf. on the Peaceful uses of Atomic Energy, Geneva (1958).
4. B.W. WIELAND - Development and evaluation of facilities for the efficient production of compounds labeled with carbon-11 and oxygen-15 at the Washington University Medical Cyclotron. Ph. D. The Ohio State University (1973).
5. R.S. TILBURY, J.P. MAMA/COS, J.S. LAUGHLIN - Initial experience with a 30 in. isochronous cyclotron for medical use. In "Uses of Cyclotrons in Chemistry, Metallurgy and Biology (Amphlett - Butterworth - London - 1970 - p 117).
6. D.R. CHRISTMAN, R.D. FINN, K.I. KARLSTROM, A.P. WOLF - Int. J. Applied Radiat. and Isotopes, 26 (1975) 435.

LEGENDES DES FIGURES

FIGURE 1 : Représentation schématique d'un système de production d'un gaz radioactif avec un cyclotron.

1. Bouteille de gaz/
2. Vanne à pointeau/
3. Débitmètre/
4. Cellule d'irradiation du gaz/
5. Tuyau "inox" de 4 mm de diamètre intérieur/
6. Représente les fours et les pièges/
7. Chambre d'ionisation pour la mesure du rendement/

FIGURE 2 : Courant de la chambre d'ionisation au point de distribution du gaz radioactif en fonction du temps.

Détermination du temps de parcours T_p .

Début de l'irradiation : $t = 0$.

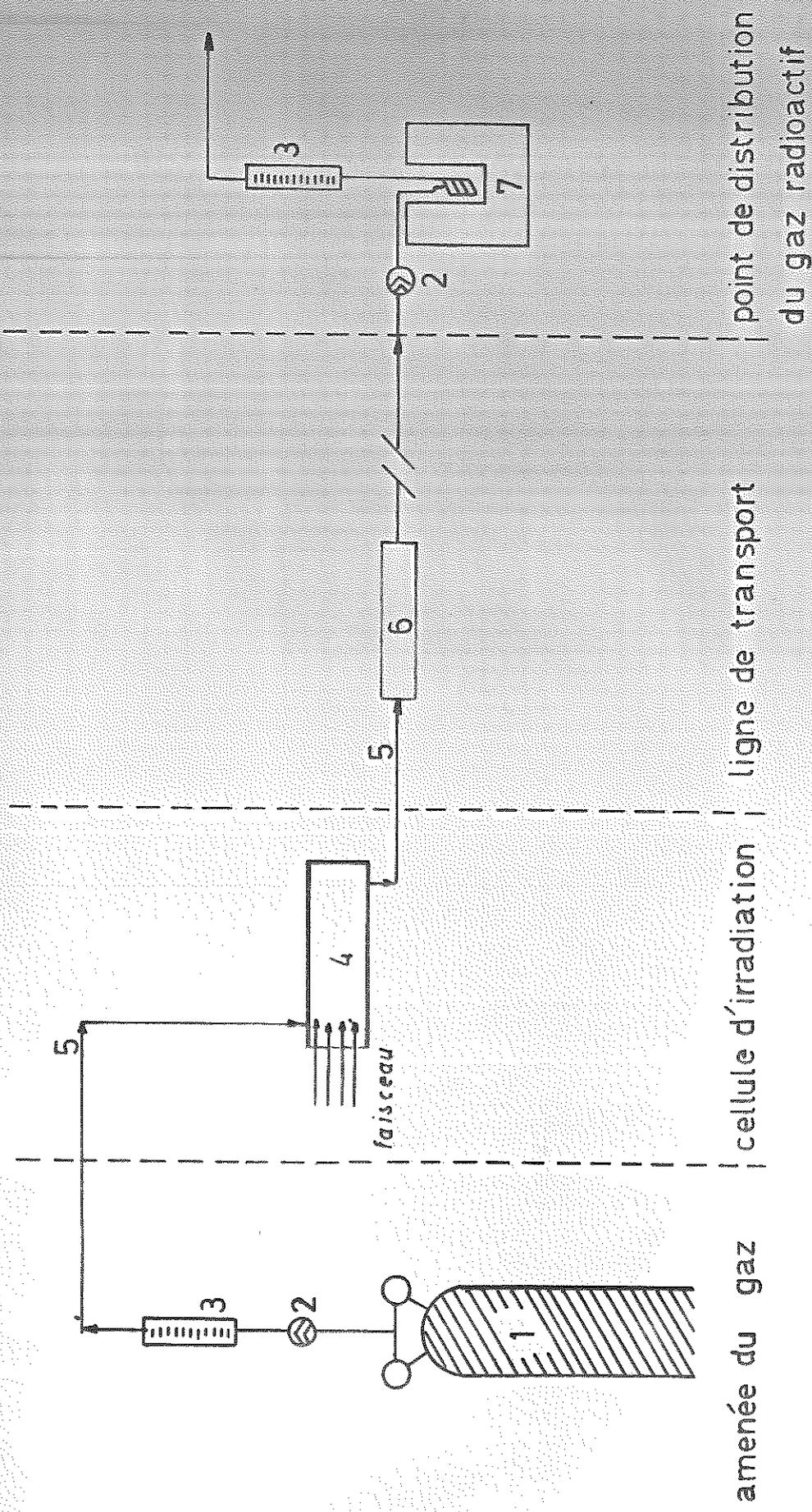


Fig 1

10^{-9} A
Courant d'ionisation

$^{15}\text{O}_2$
D = 9 ml/sec

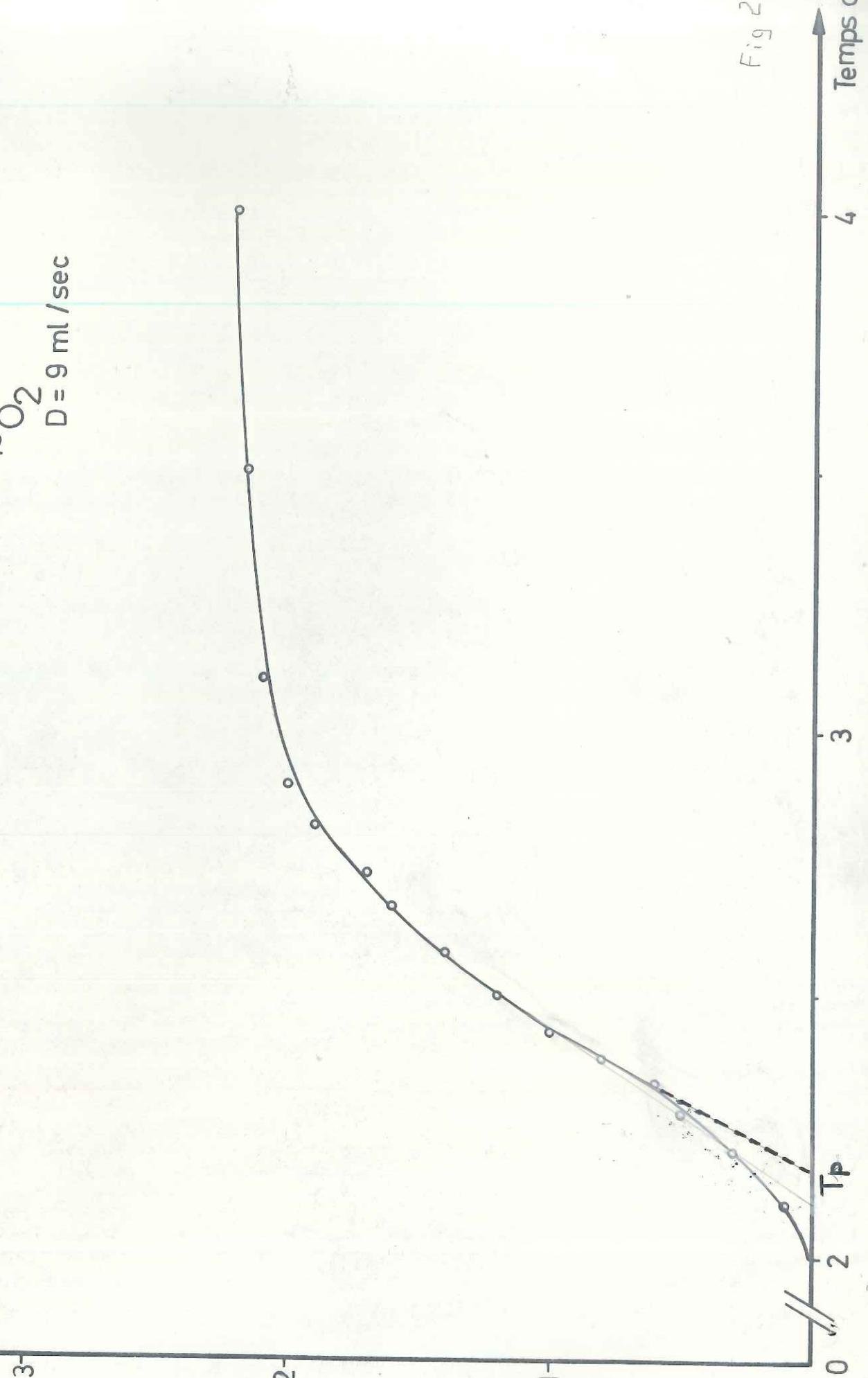


Fig 2
Temps en m