TAEK
SARAYKÖY ARAŞTIRMA MERKEZİ
Radyasyon Teknolijisi Enstitüsü

# SİKLOTRON İLE $^{201}$Tl ÜRETİMİ

Ş. TURHAN, H. YÜCEL, A. ERCAN

Ağustos - 1991
Ankara

RTE - AR 1

TAEK

SARAYKÖY ARAŞTIRMA MERKEZİ

Radyasyon Teknolojisi Enstitüsü

# SİKLOTRON İLE $^{201}$Tl ÜRETİMİ

Ş.TURHAN, H.YÜCEL, A.ERCAN

Ağustos-1991

Ankara

RTE-AR-1

## ÖZET

$^{201}$Tl radyoizotopunun, $^{203}$Tl(p,3n)$^{201}$Pb tepkileşimi ile siklotronda (Ep=30 MeV, Ip=100 μA) üretilmesi halinde yıllık üretim kapasitesinin 622 Ci ve maliyetinin 10 $/mCi 'den az olacağı hesaplanmıştır.

## ABSTRACT

The $^{201}$Tl production rate via $^{203}$Tl(p,3n)$^{201}$Pb reaction by 30 MeV protons has been calculated as 622 Ci/year and the production cost will be less than 10 $/mCi.

İÇINDEKILER

1. GIRIS ..... 1

2. $^{201}$Tl ÜRETİMİ ..... 2

2.1 Radyoizotop Üretimindeki Temel Hesaplamalar .. 2

2.2 $^{201}$Tl Üretimi ..... 4

2.3 $^{201}$Tl Üretilme Sınırı ..... 7

3. SONUÇ ..... 9

KAYNAKLAR ..... 10

Ek-1: Üretim Maliyeti ..... 11

# 1. GIRIS

Hızlandırıcılar, temel bilimsel araştırmaların yanısıra radyoizotop üretiminde de yaygın olarak kullanılmaktadır. Hem nükleer bilimlerde araştırmalar yapmak, hem de Türkiye'nin ihtiyacı olan radyoizotopları üretmek için siklotron tipi bir hızlandırıcının Türkiye Atom Enerjisi Kurumu bünyesinde kurulması düşünülmektedir.

Bilindiği üzere radyoizotoplar, nükleer tıpta teşhis ve tedavi amaçlı olarak kullanılmaktadır. Günümüzde, daha çok teşhis amaçlı emisyon tomografisindeki hızlı gelişmeler, PET (Positron Emission Tomography) ve SPECT (Single Photon Emission Computed Tomography) yöntemleri için radyoizotoplara olan talebi büyük ölçüde artırmaktadır. Bu radyoizotoplardan $^{99}Tc$ gibi $\beta^-$ yayınlayıcı olanlar, genelde reaktörde üretilir. Kullanımı giderek artan $^{11}C$,$^{18}F$,$^{67}Ga$,$^{201}Tl$ gibi $\beta^-$ yayınlamayan radyoizotoplar ise siklotronda hızlandırılan p,d,$\alpha$ gibi yüklü parçacıkların kullanılmasıyla üretilmektedir.

Bu çalışmada, özellikle, $^{201}Tl$ radyoizotopunun üretilebilirliği konusu ayrıntılı bir şekilde incelenmiştir.

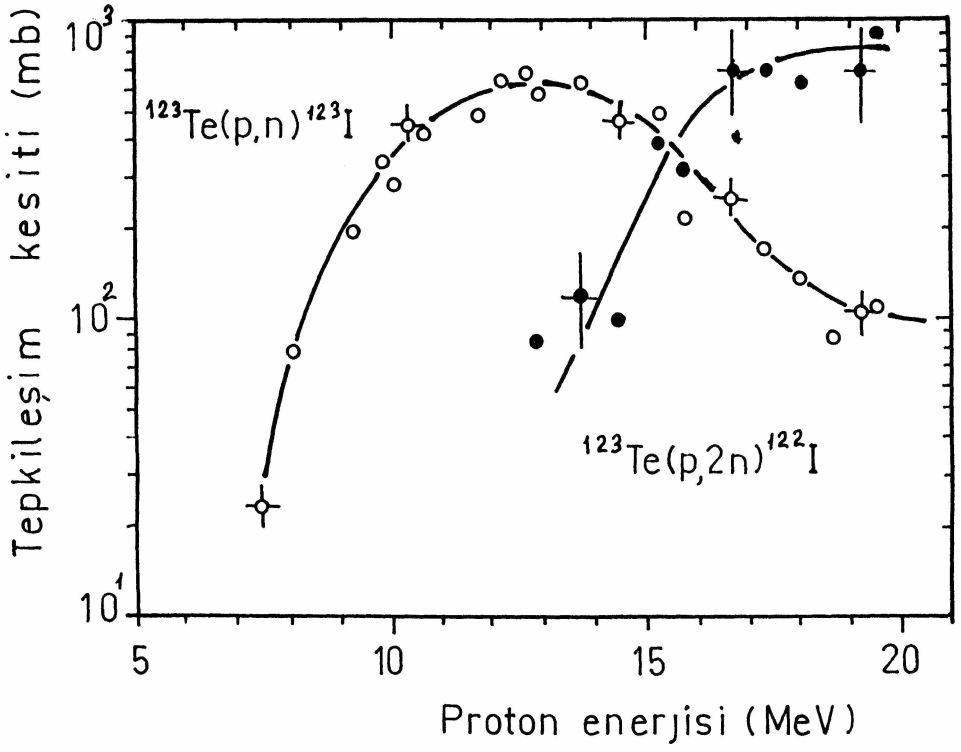
Nükleer tıpta teşhis ve tedavi amaçlı kullanılan radyoizotoplarda aşağıdaki özelliklerin olması istenir.

1. Radyoizotopun yarılanma süresinin ($T_{1/2}$) kısa olması (Böylece, vücuttan radyoaktivitenin atılması çabuk olur).
2. Uygun enerjide tek $\gamma$-çizgili olması (Dedeksiyon kolaylığı ve uygunluğu sağlar).
3. $\alpha, \beta$ yayınımı yapmayışı (İnsan vücuduna ilave bir radyasyon dozu yüklenmemiş olur).
4. Kimyasal yapısının uygun olması(Yüksek saflıkta olması, toksite sorunun olmaması).

## 2. $^{201}$Tl ÜRETİMİ

### 2.1 Radyoizotop Üretimindeki Temel Hesaplamalar

Radyoizotop üretimi çekirdek tepkileşimlerini temel alır. Genelde, X(a,b)Y şeklinde ifade edilebilen çekirdek tepkileşimlerinde, bir X hedef çekirdeği üzerine belli enerjide gönderilen bir a parçacığı tepkileşime girdiğinde Y ürün çekirdeğini oluşturur. Belli bir $E_a$ enerjisinde gönderilen bu parçacığın hedef çekirdek ile tepkileşime girmesinin derecesini belirleyen fiziksel niceliğe tepkileşim kesiti(reaction cross section) ve tepkileşim kesitinin enerjiye göre değişimine de uyarma fonksiyonu denir. Bir örnek olarak, Sekil-1 de $^{123}$I üretimi ile ilgili $^{123}$Te(p,n)$^{123}$I tepkileşimine ait uyarma fonksiyonu görülmektedir.




Sekil-1. $^{123}$Te(p,xn) tepkileşimleri için uyarma fonksiyonları(ref.1).

Sekil-1 de gösterilen $^{123}$Te(p,n)$^{123}$I uyarma fonksiyonunda, tepkileşim kesitinin maksimum olduğu ($\sigma_{max}$ ~650 mb) değerine karşılık gelen $E_0$ enerjisi yaklaşık 13 MeV'dir. Laboratuvar sistemindeki eşik enerjisi,$E_{th}$ ile kütle merkezi sistemindeki Q değeri arasındaki bağıntı;

$$E_{th} = -\left(1 + \frac{m_a}{M_X}\right).Q \qquad (1)$$

ile verilir. Burada, Q değeri aşağıdaki şekilde tanımlanır:

$$Q = c^2.[(M_X + m_a) - (M_Y + m_b)] \qquad (2)$$

Tepkileşmenin meydana gelebilmesi için $E_a > E_{th}$ şartının sağlanması gerekir. Ancak, a ile gösterilen parçacığınelektrik yüklü olması durumunda, X(a,b)Y şeklindeki bir tepkileşimin olabilmesi için gelen parçacık a ile hedef

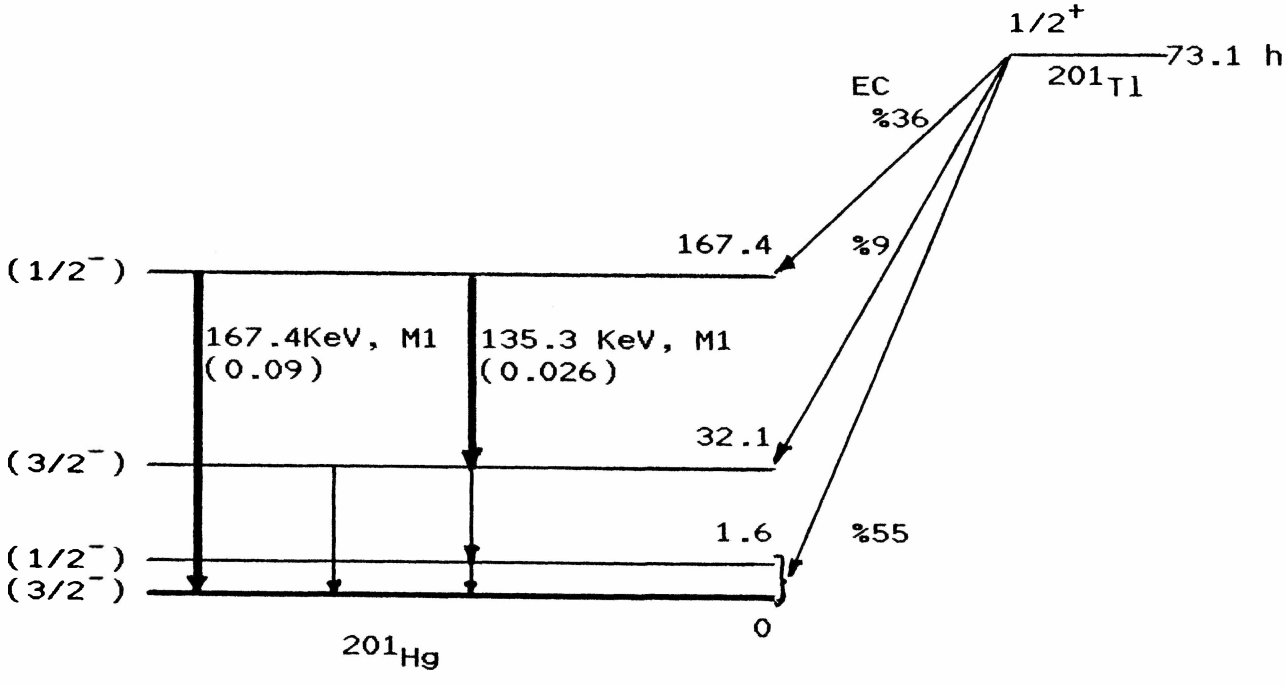
çekirdek X arasındaki Coulomb engelinin de aşılması gerekir. Gelen parçacık ile hedef çekirdek arasındaki Coulomb enerjisi aşağıdaki ifade ile verilir.

$$E_{coul} = 1.44 \frac{z.Z}{(R_a + R_X)} \qquad [MeV] \qquad (3)$$

Burada, çekirdek yarıçapları $R = 1.3A^{\frac{1}{3}}[fm]$ olarak tanımlıdır. $Z$ ve $z$ hedef çekirdeğin ve tepkileşmeye giren parçacığın atom numaralarını gösterir.

## 2.2 $^{201}$Tl Üretimi

SPECT yönteminde görüntüleme için uygun özelliklere sahip olması nedeniyle, miyokardial tetkiklerde $^{201}$Tl radyoizotopunun kullanımı yaygınlaşmıştır. $^{201}$Tl'un bozunum şeması Sekil-2 de gösterilmiştir.




Sekil 2. $^{201}$Tl'un EC bozunum şeması (ref 2).

Toplam gamma + X ışını yayınından ortalama foton enerjisi <E>=90 KeV 'dir.

$^{201}Tl$, doğrudan metalik Hg,HgO ve $HgCl_2$ gibi hedefler kullanılarak; $^{201}Hg(p,n)^{201}Tl$ ve $^{202}Hg(p,2n)^{201}Tl$ tepkileşimleriyle gerçekleştirilebileceği gibi, $^{203}Tl$ çekirdeklerinin protonlar ile ışınlanmasından oluşan $^{201}Pb$ 'in $EC$ bozunumu sonucunda da elde edilebilir.

$$Tl^{203}(p,3n)Pb^{201} \xrightarrow[T_{\frac{1}{2}}=9.3h]{EC} Tl^{201} \xrightarrow[T_{\frac{1}{2}}=73.1h]{EC} Hg^{201}$$

Ancak, Hg-hedef kullanıldığında $^{201}Tl$, kısa ömürlü $^{198m}Tl$ ($T_{1/2}=1.9h$), $^{198}Tl$ ($T_{1/2}=5.3h$), $^{199}Tl$ ($T_{1/2}=7.4h$), $^{200}Tl$ ($T_{1/2}=26.1h$) ve uzun ömürlü $^{202}Tl$ ($T_{1/2}=12.2$gün) ve $^{204}Tl$ ($T_{1/2}=3.78$ yıl) radyoizotoplarıyla bulaşmış olarak üretilir.

$^{203}Tl$-hedef kullanıldığında $^{201}Tl$ oluşması iki aşamada ele alınabilir:

(i) Işınlama süresince ($0 \le t \le t_i$) geçerli olan durum:

$$\frac{dN_{Pb}}{dt} = R - \lambda_1 . N_{Pb} \qquad (4)$$

$$\frac{dN_{Tl}}{dt} = -\lambda_2 N_{Tl} + \lambda_1 N_{Pb} \qquad (5)$$

Burada,

$\lambda_1$:$^{201}Pb$'nin bozunum sabiti ($\lambda = \ln 2/T_{1/2}$),$\lambda_2$: $^{201}Tl$'in bozunum sabiti,$N_{Pb}(t)$ : Herhangi bir t anındaki $^{201}Pb$ çekirdeklerinin sayısı, $N_{Tl}(t)$: Herhangi bir t anındaki $^{201}Tl$ çekirdeklerinin sayısıdır. $\Phi$ ; hedef üzerindeki etkin proton akısını(1/sn.cm$^2$), $\sigma$ ; tepkileşim kesitini (cm$^2$) ve n ; ışınlanan hedef çekirdek sayısını göstermek üzere, sabit tepkileşim hızı,

$$R = \Phi . \sigma . n = \left(\frac{I_p}{e}\right) \sigma . G . C . \frac{N}{A} . h$$

şeklinde ifade edilebilir. Burada,

$I_p$: Proton akımı(Amp.),

G: Işınlanan numünenin ağırlığı(g),

C : Numune içindeki $^{203}Tl$'ün derişimi(concentration),

N : Avogadro sayısı ($6.022\ 10^{23}$ /mol),

A : Işınlanan elementin (Tl) atom ağırlığı(204.38g/mol),

h : Hedef çekirdeğin ($^{203}Tl$) izotopik bolluğu,

e : Birim elektrik yükü ($1.602\ 10^{-19}$ Amp.s).

Denklem (4) in çözümünden $^{201}Pb$ çekirdeklerinin sayısı,

$$N_{Pb} = \frac{R}{\lambda_1}(1 - e^{-\lambda_1 t}) \tag{6}$$

Denklem (5) nin çözümünden ise $^{201}Tl$ çekirdeklerinin sayısı,

$$N_{Tl} = \frac{R}{\lambda_2}\left\{1 + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2/\lambda_1 - 1} + \frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_1/\lambda_2 - 1}\right\} \tag{7}$$

eşitlikleriyle elde edilir.

(ii) Işınlama bittikten sonraki durum ($t_i \le t$):

Işınlama (irradiation time,$t_i$) ve bekletilme süresi (cooling time,$t_c$) gözönünde tutulduğunda geçerli olan bozunma denklemleri;

$$\frac{dN_{Pb}}{dt} = -\lambda_1 N_{Pb} \tag{8}$$

$$\frac{dN_{Tl}}{dt} = -\lambda_2 N_{Tl} + \lambda_1 N_{Pb} \tag{9}$$

şeklinde verilir. Denklem (4) ve (5) nin çözümü sınır şartları olarak alındığında, Denklem (8) ve (9) nın çözümleri;

$$N_{Pb} = \frac{R}{\lambda_1}(1 - e^{-\lambda_1 t_i})e^{-\lambda_1 t} \tag{10}$$

$$N_{Tl} = \frac{R}{\lambda_2}\left\{\frac{(1 - e^{-\lambda_1 t_i}).e^{-\lambda_1 t}}{1 - \lambda_1/\lambda_2} + \frac{(1 - e^{-\lambda_2 t_i}).e^{-\lambda_2 t}}{1 - \lambda_2/\lambda_1}\right\} \tag{11}$$

elde edilir. Denklem (11)'den $t=t_c$ sonundaki $^{201}Tl$ aktivitesi $A_{Tl} = \lambda_2 N_{Tl}$ şeklinde kolayca bulunabilir.

Belli bir ışınlama süresi için $^{201}Tl$ aktivitesinin maksimum olduğu en uygun bekleme süresi,

$$\frac{d}{dt} A_{Tl}|_{t=t_c} = 0 \qquad (12)$$

koşulundan;

$$t_c(t_i) = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln\left(\frac{1 - e^{-\lambda_1 t_i}}{1 - e^{-\lambda_2 t_i}}\right) \qquad (13)$$

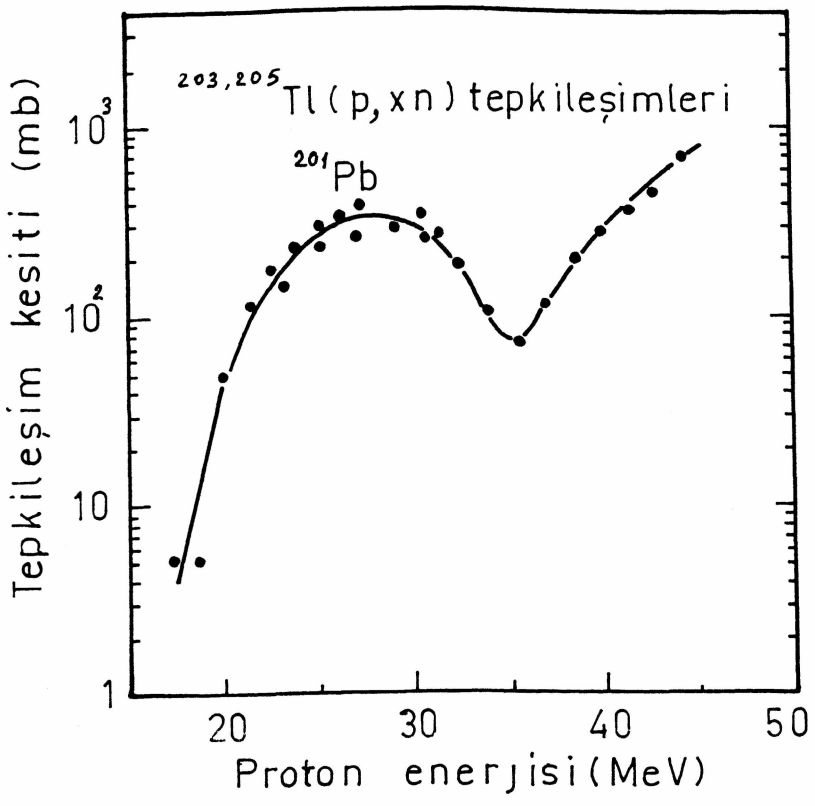
eşitliğiyle bulunur. Denklem (13)'de, bozunum sabitleri $\lambda_1 = \ln 2/9.33h$ ve $\lambda_2 = \ln 2/73.1h$ degerleri ile ışınlama sürelerine göre bekleme süreleri hesaplandığında, en uygun bekleme zamanı için $t_c \cong 31.63 - 0.425t_i(h)$ bağıntısı bulunabilir.

## 2.3 $^{201}Tl$ Üretilme Sınırı:

Birim parçacık akımı ve birim zaman başına üretilen aktiviteye "üretilme sınırı" denir. Bu sınırı hesaplamak için Denklem (11) ile verilen aktivasyon ifadesinin kullanılması gerekir.

$$A_{Tl} = R\left\{\frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}(1 - e^{-\lambda_1 t_i})e^{-\lambda_1 t_c} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}(1 - e^{-\lambda_2 t_i})e^{-\lambda_2 t_c}\right\} \qquad (14)$$

Bu ifadede; R sabit tepkileşim hızı ($R = \Phi\sigma G C \frac{N}{A} h$) hesaplanırken, $^{203}Tl(p,3n)^{201}Pb$ tepkileşimi için alınan ortalama $\sigma$ değeri yaklaşık 1000 mbarn'dır(Sekil-3).




Sekil 3. Doğal talyumun protonlar ile ışınlanmasında, $^{201}Pb$ oluşumu için uyarma fonksiyonu(ref.3)

$^{203}Tl$'un izotopik bolluğu %29.5 olduğu için $^{203}Tl(p,3n)^{201}Pb$ tepkileşim kesitinin en yüksek değeri de 350/0.295=1200 mbarn'a karşılık gelir. Ref.(4)'de $E_p$=27.4 MeV için $\sigma_{max}$ =1250 mbarn vermektedir.

Ancak ışınlanma süresince, hedef atomları ile etkileşen protonların enerjisinin bir kısmının hedef malzeme tarafından soğurulacağı bilinen bir gerçektir ki bu da malzemenin durdurma gücüdür (stopping power) ve aşağıdaki formül ile ifade edilir;

$$S = -\frac{1}{\rho}\frac{dE}{dx} \qquad (15)$$

Burada, $\rho$ malzemenin yoğunluğu, dE/dx ,ise spesifik enerji kaybıdır. 30 MeV'lik protonlarla ışınlanan $^{203}Tl$ hedef içinde yaklaşık 5 MeV'lik bir enerji kaybı olacağı varsayıldığında; hedef numünenin kalınlığı Denklem (15) den

yaklaşık 0.50 mm (0.02 inch) dir. Işınlanacak numünenin ağırlığı ise $G = d.F.\rho_{Tl}$ ifadesinde d=0.50 mm, $\rho_{Tl} = 11.85 gr/cm^3$ ve F=0.60 $cm^2$ değerleri için 0.368 gr olarak hesaplanır. Burada F, siklotrondan çıkan demetin özelliklerine göre belirlenen demet spot yüzeyidir.

Günlük maksimum $^{201}Tl$ aktivitesinin hesaplanması için ; $t_i$=16 saat, $t_c$=24 saat, $E_p$=30-25 MeV aralığında $\sigma$=1000 mbarn, $I_p$=100 $\mu A$, G=0.368 gr, C=1, h=0.95 (zenginleştirilmiş $^{203}Tl$) değerleri dikkate alındığında $^{201}Tl$ aktivitesi, Denklem (14) den, $A_{Tl} = 0.114 \cdot R$ bulunur. Burada,

$$R = 1.609 \times \left( \frac{100 \times 10^{-6}}{1.6022 \times 10^{-19}} \right) \times 1000 \times 10^{-27} \times 0.368 \times 0.95 \times \frac{6.022 \times 10^{23}}{204.38}$$

dır. Dolayısıyla

$A_{Tl} = 0.1114 \times 1.0345 \times 10^{12} = 1.15 \times 10^{11} Bq/gun$

$= 3.11 Ci/gun$

olarak hesaplanır.

Bütün bu hesaplamalarda, hedefin uygun şekilde soğutulduğu varsayılmıştır. Ek-1'de öngörülen işletme parametreleriyle $^{201}Tl$ üretiminin maliyeti hesaplanmıştır.

## 3. SONUÇ

Yukarıdaki hesaplamalardan proton enerjisi 30 MeV olan bir siklotron kullanılarak günde 3.11 Ci, yılda-200 gün çalışmayla- 622 Ci $^{201}Tl$ radyoizotopunun üretilebileceği anlaşılmıştır. TAEK de kurulması düşünülen siklotron ile üretilebilecek $^{201}Tl$'un birim maliyetinin ise, 10 $/mCi'nin altında kaldığı hesaplanmıştır.

## KAYNAKLAR

1. Qaim, S.M.,"Production of Radioisotopes Using Accelerators", Proceedings The 2nd International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research, Evolution by Accelerators, p.98 (1990).

2. Lederer, C. M. and Shirley V. S. "Table of Isotopes", 7th Edition, John Wiley and Sons, Inc. (1978).

3. Qaim, S.M., Weinreich, R. and Ollig, H.,"Production of $^{201}Tl$ and $^{203}Pb$ via Proton Induced Nuclear Reactions on Natural Thallium ", International Journal of Applied Radiation and Isotopes, Vol. 30, No. 2, pp. 85-95, (1979)

4. Gandarias-Cruz D and Okamato K., "Status on the Compilation of Nuclear Data for Medical Radioisotopes Produced by Accelerators", IAEA Nuclear Data Sect., Vienna, (1988).

**EK-1 : $^{201}$Tl ÜRETİM MALİYET HESABI**

**Yıllık azami 600 Ci'lik aktivite üretimi için giderler (1000$)**

$^{203}$Tl izotopu(%95 saflıkta)..... 480

0.5925 g/gün x 200 gün/yıl x 4000 $/g

Kimya Laboratuvarı için ..... 50

Elektrik + Su + Ulaştırma + Sıvı azot ile soğutma ..... 100

(100 kW x 24 h/gün x 365 gün x 0.1 $/kWh) +12.400 $

Personel ..... 120

10 x 12 x 1000 $

Toplam 750

**200, 400 veya 600 Ci'lik $^{201}$Tl aktivitesi üretilmesi halinde ($/mCi) cinsinden maliyet tablosu.**

| Aktivite(Ci) | Amortisman Süresi (yıl) 1 | 5 | 10 |
|---|---|---|---|
| 200 | 27 | 7 | 4 |
| 400 | 14 | 4 | 3 |
| 600 | 10 | 3 | 2 |

. Maliyet hesaplarının tümünde, makina+teçhizat için yaklaşık $5x10^6$ $ ve diğer giderlerde azami değerler dikkate alınmış, İnşaat harcamaları ise hesaba katılmamıştır.

. 1991 yılında Türkiye'de işler durumda olan 15 SPECT ve 35 gamma kamerada yıllık tüketilen $^{201}$Tl aktivitesinin yaklaşık 100 Ci civarında olduğu tahmin edilmiştir. Hastaneler ise $^{201}$Tl'a 175 $/mCi 'lık bir fiyat ödemektedirler.