

# R&D pour la production de radioisotopes pour les applications médicales à SPIRAL-2

M. Fadil, G. de France, F. De Oliveira, H. Franberg, A.M. Frelin-Labalme, X. Ledoux, M. Michel, M.H. Moscatello, C. Stodel

Réunion GDR-MI2B, Toulouse , 3-4 Décembre 2018

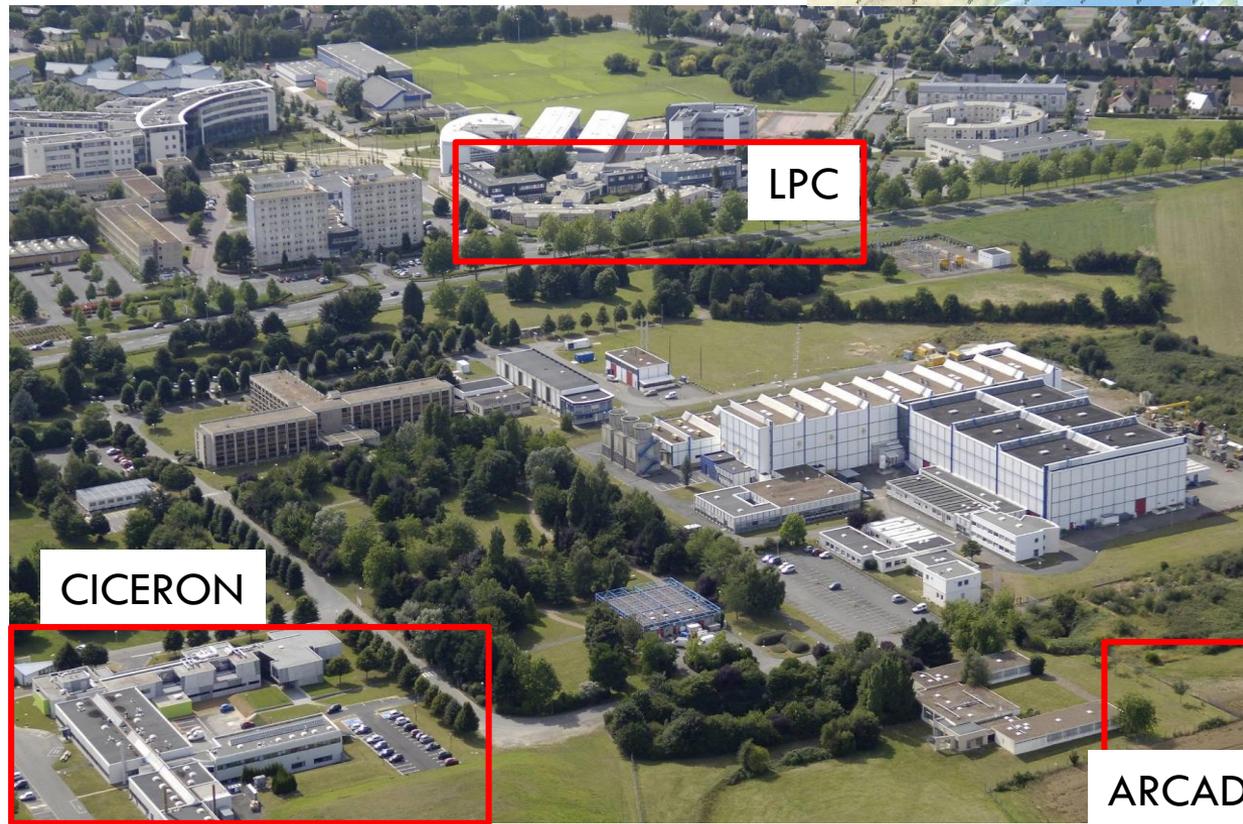
- Motivations et opportunités
- At-211
- Autres émetteurs  $\alpha$

- Motivations et opportunités
- At-211
- Autres émetteurs  $\alpha$

## Grand Accélérateur National d'Ions Lourds



- ❑ National Facility, located at Caen, France
- ❑ First beam in 1983
- ❑ 250 permanent people ( $\approx 25$  nuclear physicists)
- ❑ 700 scientific visitors per year



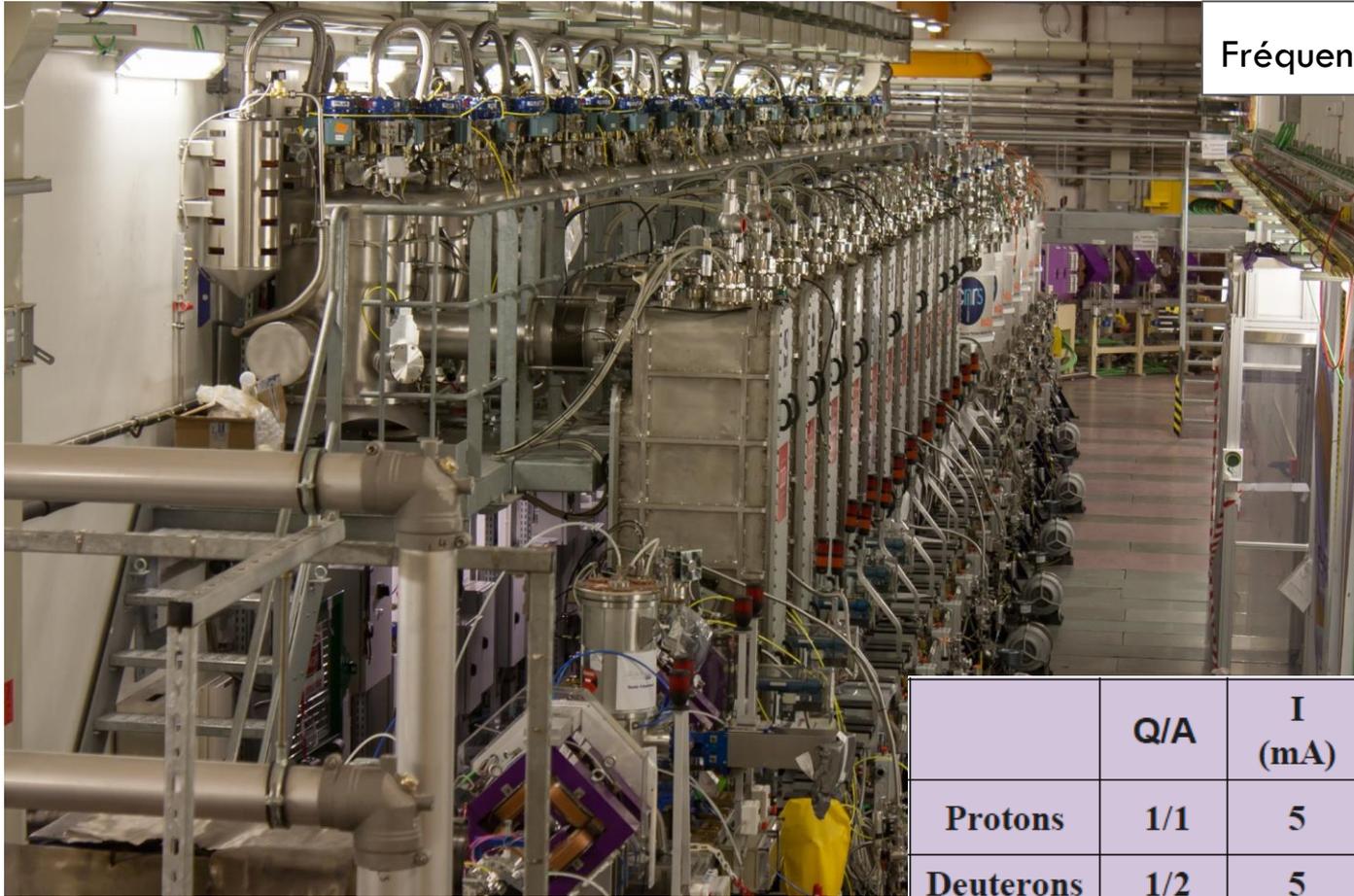
Fundamental physics

Industrial applications

ARCADE

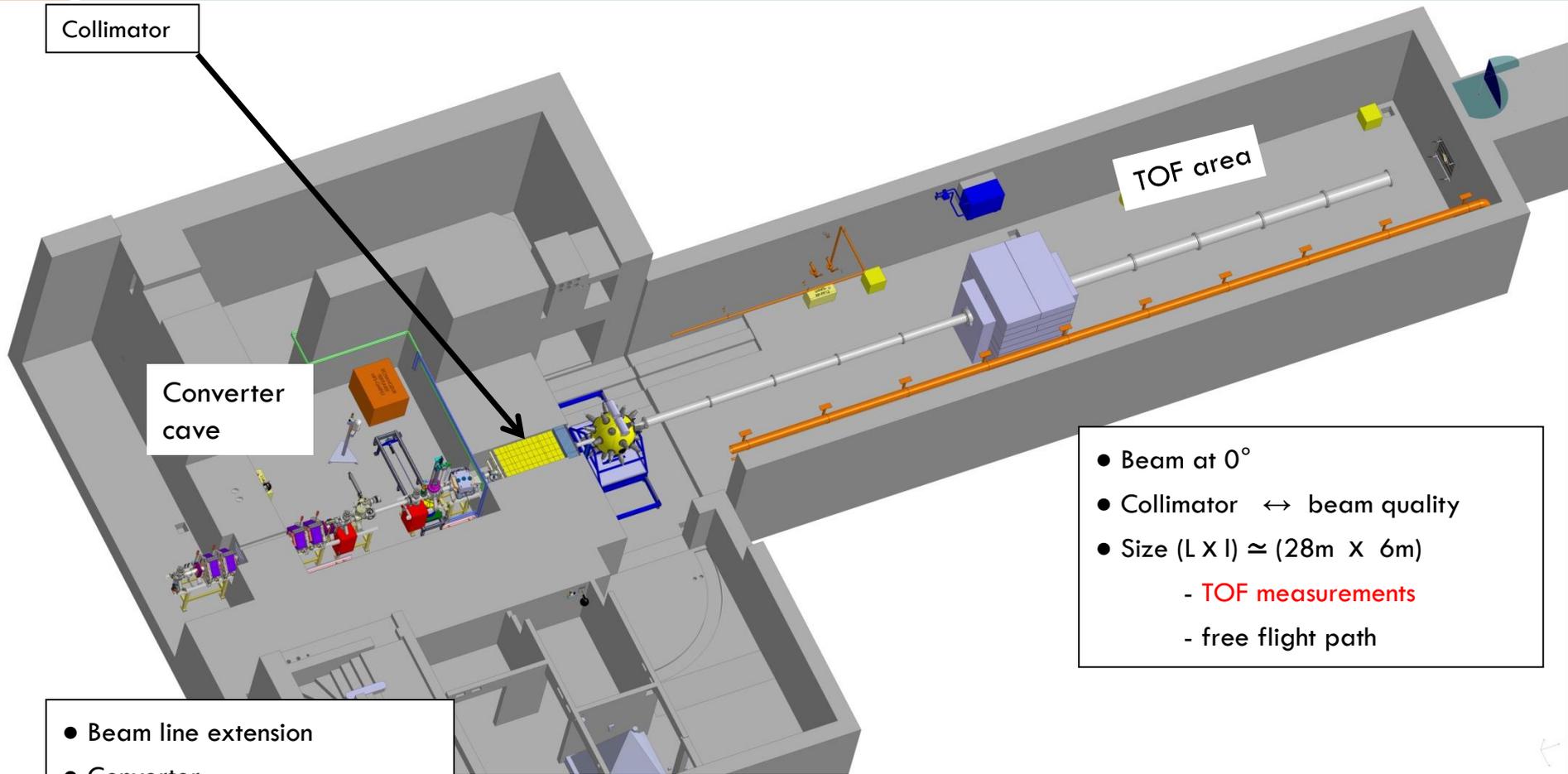
- **Courants limités (cyclotrons):**
  - ▣ Machines dédiées, pas optimisées pour la production de nouveaux isotopes (énergie fixe) => sections efficaces, contamination,...
  - ▣ Seulement proton, deuton et alpha
  - ▣ Cibles ne supportant pas de très hautes intensités faisceau
  
- **Nouvelles possibilités à SPIRAL2:**
  - ▣ Faisceau intense ( $I_{\max}=5$  mA pour deutons à 40MeV)
  - ▣ Energie réglable
  - ▣ Nouveaux faisceaux (en comparaison aux installations de production existantes)

# L'accélérateur linéaire de SPIRAL-2



Fréquence RFQ  $F = 88\text{MHz}$

	Q/A	I (mA)	Energy (Mev/u)	CW max beam Power (KW)
<b>Protons</b>	1/1	5	2 - 33	165
<b>Deuterons</b>	1/2	5	2 - 20	200
<b>Ions</b>	1/3	1	2 - 14.5	45
<i>Ions (option)</i>	1/6	1	2 - 8	48



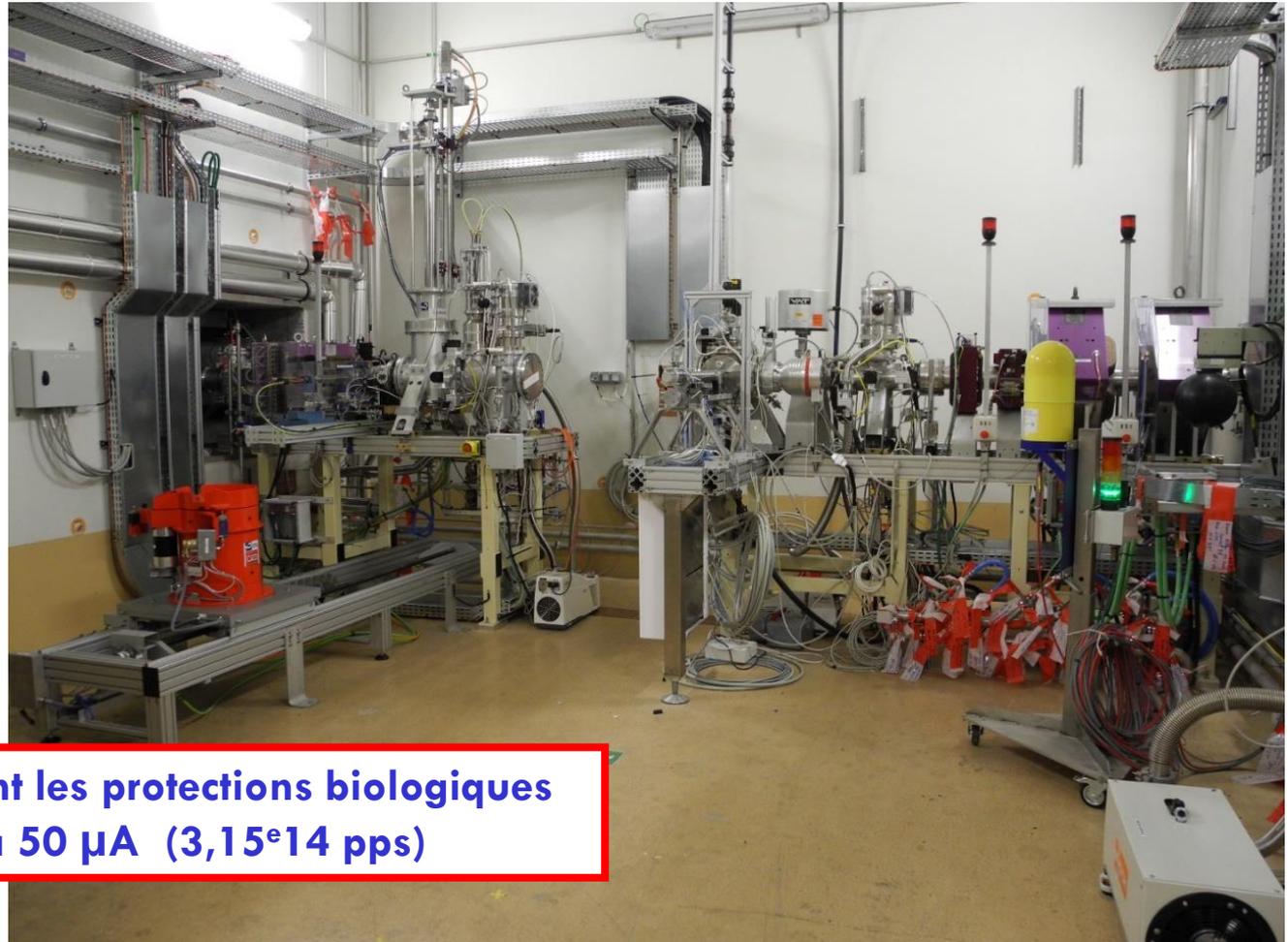
Collimator

Converter cave

TOF area

- Beam line extension
- Converter
- Magnet and beam dump
- Irradiation station (n, p, d)

- Beam at 0°
- Collimator ↔ beam quality
- Size (L X l) ≈ (28m X 6m)
  - TOF measurements
  - free flight path



**Faisceau dimensionnant les protections biologiques  
40 MeV d + Be à 50  $\mu$ A (3,15 $\times$ 10<sup>14</sup> pps)**

**Classe de confinement C3, Ventilation nucléaire de type II B**

- **Stratégie:**
  - Uniquement R&D
  - Collaboration
  - Objectifs ciblés
  - Emetteurs alpha
  
- **Isotopes d'intérêt (aujourd'hui):**
  - $^{211}\text{At}$  (ARRONAX et al)
  - Etude de la réaction  $\alpha+\text{Th}$

# Plan

- Motivations et opportunités
- **At-211**
- Autres émetteurs  $\alpha$

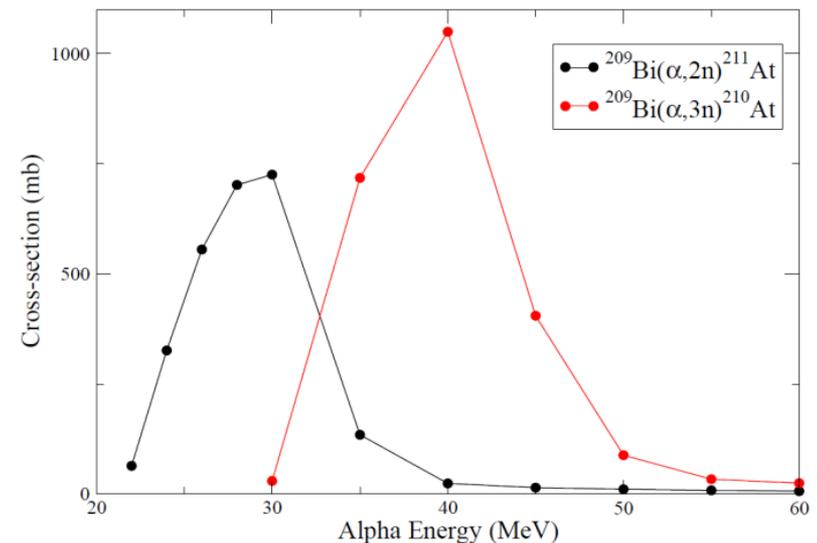
## Production par réaction $^{209}\text{Bi}(\alpha,2n)^{211}\text{At}$

### □ Réaction

- Seuil de réaction 20,7 MeV
- Section efficace max 700 mb à 30 MeV
- Production parasite de  $^{210}\text{Po}$ :  $^{209}\text{Bi}(\alpha,3n)^{210}\text{At} \rightarrow ^{210}\text{Po}$ ,  $t_{1/2} = 138 \text{ d}$ ,  $E_s = 28,6 \text{ MeV}$
- Energie optimale  $\approx 30 \text{ MeV}$  (ratio  $N^{210}\text{At}/N^{211}\text{At} < 10^{-4}$ )

### □ Estimation de production :

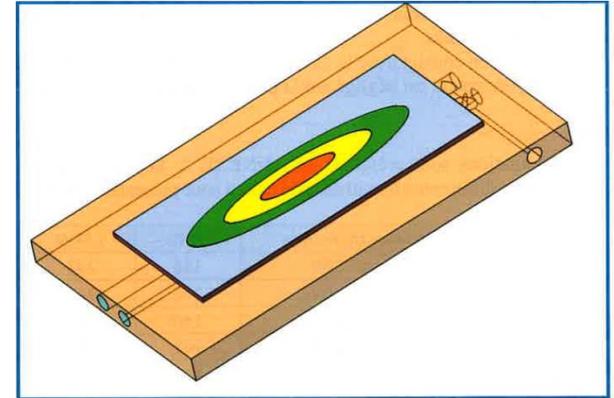
- Alpha 28 MeV, 1 kW
- Cible : dépôt de Bi sur support de AlN
- At-211 production : 9,6 GBq en 8h



- Cible fournie par ARRONAX
- Irradiation à SPIRAL-2
  - ▣ Station d'irradiation dans la salle du convertisseur
  - ▣ Faisceau  $\alpha$  de 28 MeV à 70  $\mu$ A ( $2,18 \times 10^{14}$   $\alpha$ /s)
  - ▣  $T_{\text{irradiation}} = 8\text{h}$
  - ▣ Production de 10GBq d'At-211
  - ▣ DED après 30 min de refroidissement: 0,25 mSv/h à 30 cm
- Envoi de la cible irradiée à ARRONAX
- Traitement à ARRONAX

# Etude thermique

- 1kW reparti sur des ellipses concentriques
- Deux dessins étudiés:
  - ▣ Cible plaquée sur support en cuivre refroidi
  - ▣ Cible en contact avec le circuit d'eau
- Paramètres:
  - ▣ Résistances thermiques cible-plaque de cuivre
  - ▣ Température du liquide de refroidissement



	résistance thermique	1KW	1,5KW	2KW	
solution plaquée (eau 15°C)	100 mm <sup>2</sup> .C/W	188	292		
	200 mm <sup>2</sup> .C/W	252	387		
solution plaquée (éthanol -30°C)	100 mm <sup>2</sup> .C/W	140	243		
	200 mm <sup>2</sup> .C/W	202	340		
solution contact eau (eau 15°C)		156	228		309
solution contact eau (éthanol -30°C)		105	180		260

Tableau 4 : températures maximum de la cible calculées en °C

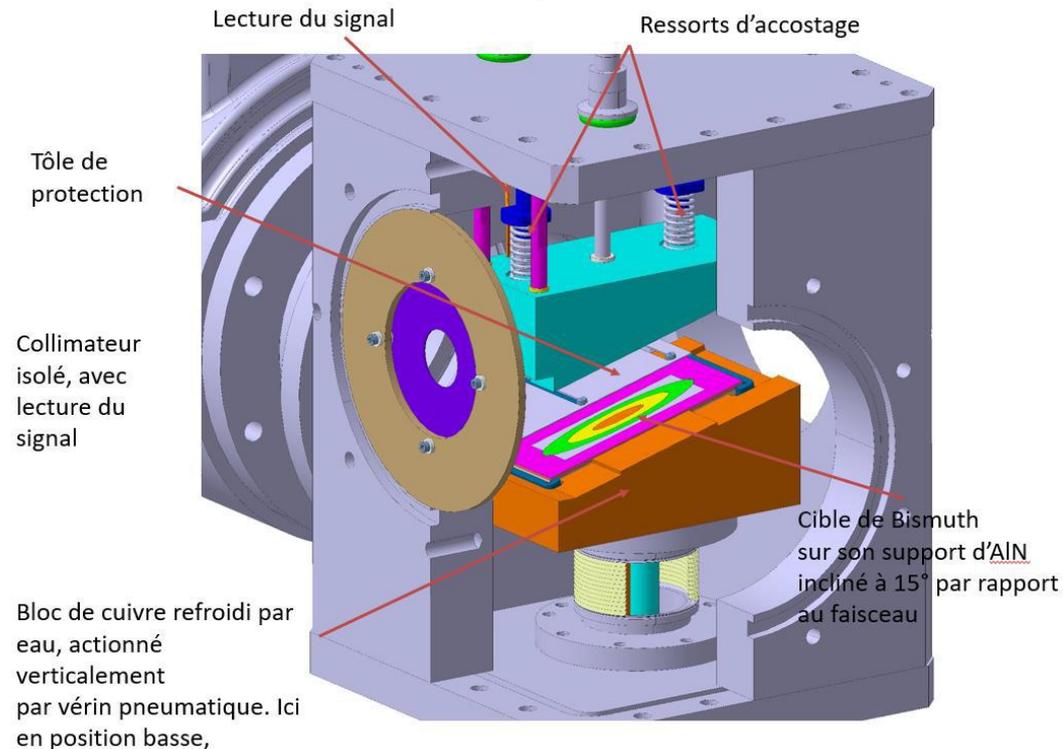
**Quelque soit la solution la cible tient 1 kW**

$T_{\text{fusion}} \text{ Bi} = 271^{\circ}\text{C}$

# La station d'irradiation

- Mise en place et retrait manuel
- Cible sur vérin permettant le réglage du faisceau avant irradiation
- Retrait en assurant le confinement (manche vinyle)
- Dosimétrie évaluée par opération
  - ▣ extrémité :  $480\mu\text{Sv}$
  - ▣ corps entier :  $20\mu\text{Sv}$
- Transport : colis de type A

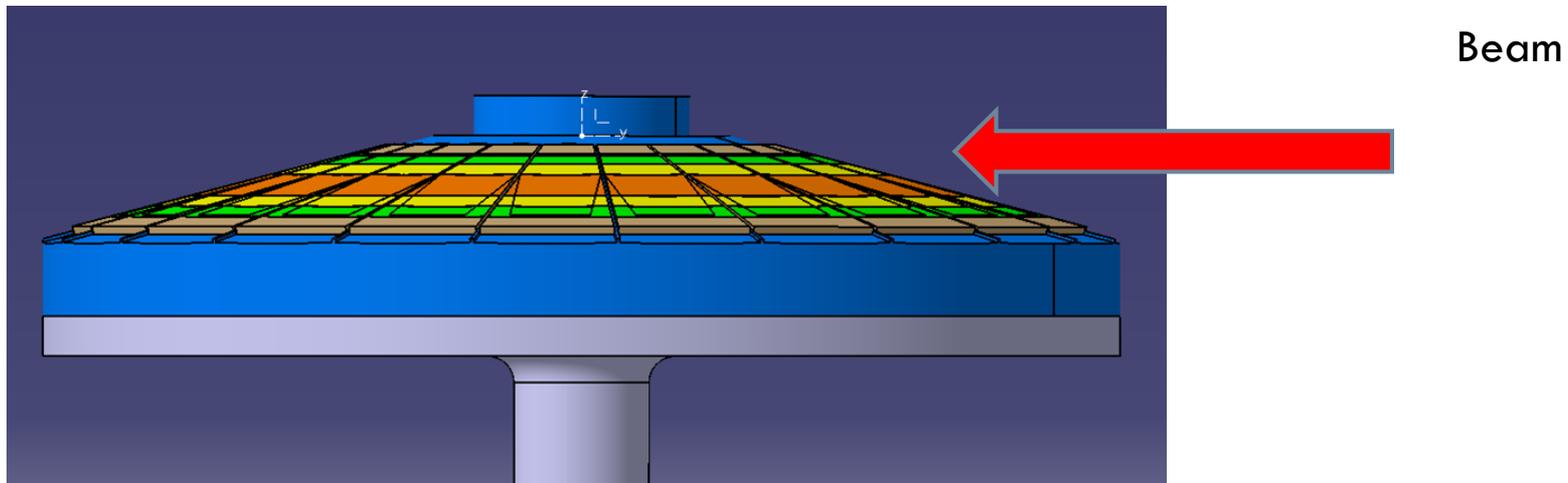
Collaboration NPI  
En construction



## Etude de faisabilité

- Production par  $\alpha$  + Bi
- Collaboration avec NPI Rez (République Tchèque)
- Puissance 10 kW
- Cible rotative

$\varnothing$  beam (+/-3  $\sigma$ ) = 24mm  
we kept the angle of the target of 15°



# $^{211}\text{At}$ à NFS (2)

## Production d'un générateur par réaction $^{209}\text{Bi}(^6\text{Li},4n)^{211}\text{Rn}$ ou $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5n)^{211}\text{Rn}$

### □ Réaction

#### □ Seuils de réaction

- 28,5 MeV pour  $^{209}\text{Bi}(^6\text{Li},4n)$
- 36,13 MeV pour  $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5n)$

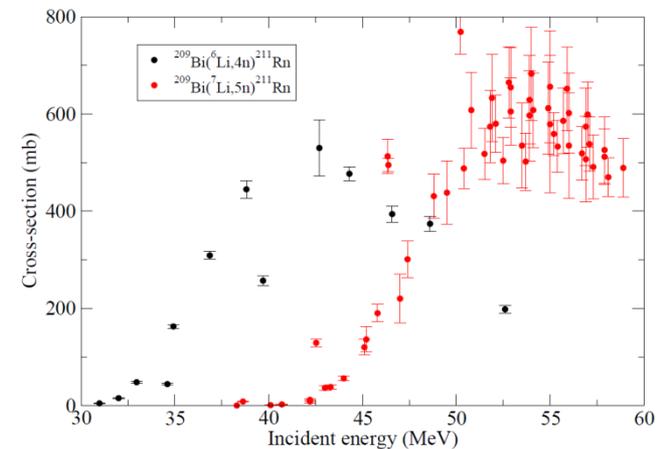
#### □ Production parasite de $^{210}\text{Po}$

- $E(^6\text{Li}) < 36$  MeV pour  $^{209}\text{Bi}(^6\text{Li},4n)$
- $E(^7\text{Li}) < 48$  MeV pour  $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5n)$

#### □ Domaine en énergie de SPIRAL-2

### □ Estimation de production :

- Code LISE
- Faisceau Lithium stoppé dans la cible
- Durée d'irradiation optimale : 14h
- La réaction  $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5n)^{211}\text{Rn}$  semble plus performante

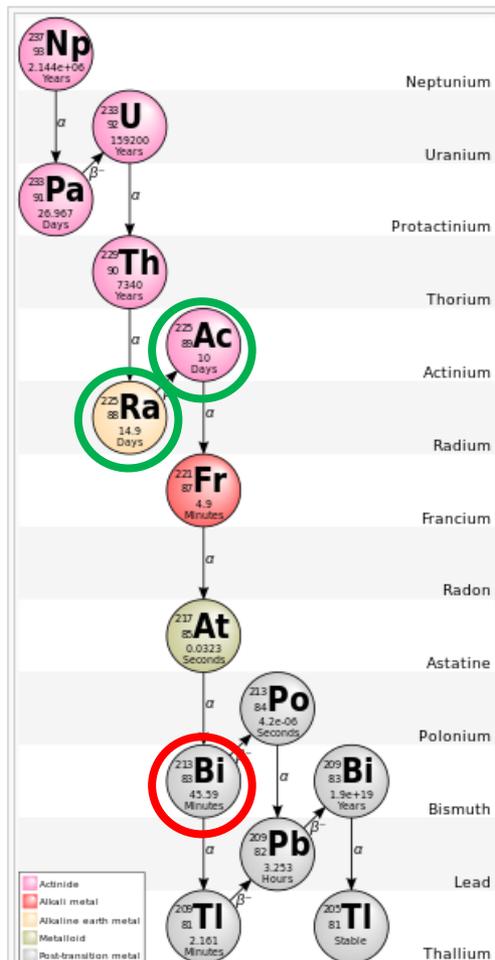


48 MeV	36 MeV	Rapport activité
Act-utile (Bq/ $\mu\text{A}$ )	Act-utile (Bq/ $\mu\text{A}$ )	
$^7\text{Li}$	$^6\text{Li}$	$^7\text{Li}/^6\text{Li}$
4,84E+05	1,83E+05	2,65

- Motivations et opportunités
- At-211
- **Autres émetteurs  $\alpha$**

# Autres émetteurs $\alpha$

**Bi-213** à partir du **Ra-225** ou de **l'Ac-225**

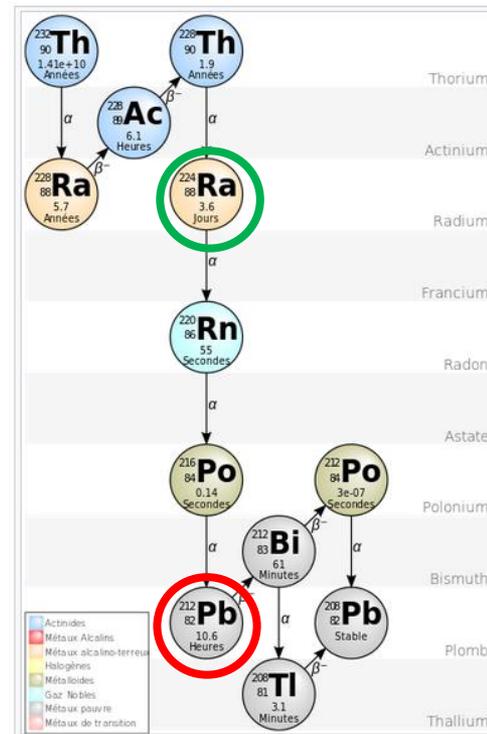


Chaîne du Neptunium 237

Générateurs

Radio-isotopes d'intérêt

**Pb-212** à partir du **Ra-224**



Chaîne du thorium 232

Production des générateurs par réaction  $\alpha + \text{Th-232}$

# Production de Ra-224 avec faisceau de $\alpha$

□ Base TENDL-2014: Réaction  $\alpha + \text{Th-232}$

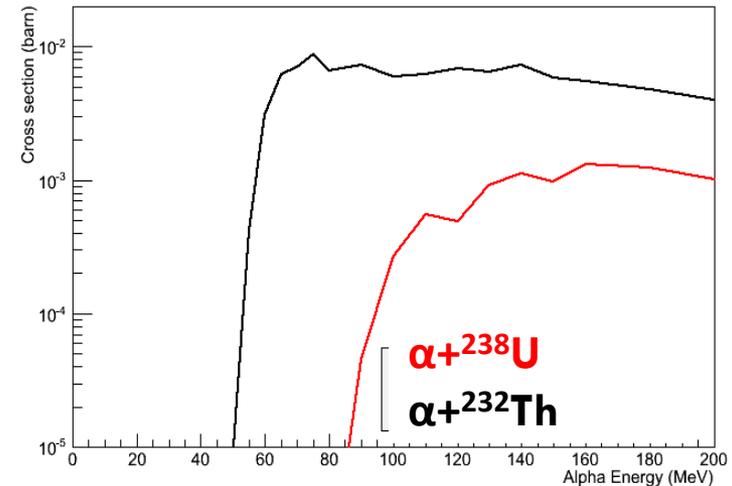
□ Seuils de réaction

- $\approx 50$  MeV pour  $\alpha + \text{Th-232}$
- $\approx 100$  MeV pour  $\alpha + \text{U-238}$

□ Calcul taux de production :

- Cible de Thorium naturel  $ep=0,05$  cm telle que  $E_{\text{sortie}} \approx 50$  MeV
- FISPACT-II vs PHITS : énormes différences
- $I=200\mu\text{A}$  ( $6,2e14$   $\alpha/s$ )
- $T_{\text{irr}}=1$  j

	MCNPX+FISPACT II	PHITS
$^{224}\text{Ra}$	$3.56 \times 10^8$ Bq/g	$5.34 \times 10^6$ Bq/g

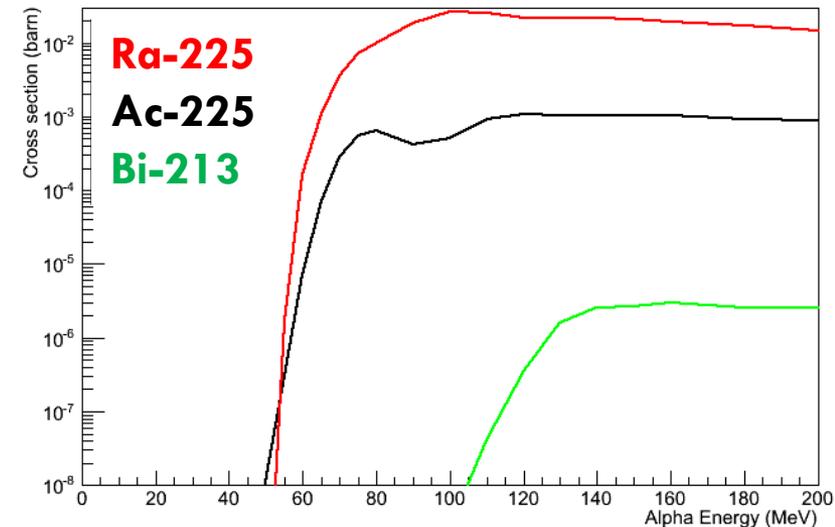


⇒ Mesures inédites section-efficaces pour vérifier (contraindre) les codes de calcul

⇒ Expérience acceptée au PAC

# Production de Ac-225 avec faisceau de $\alpha$

- Base TENDL-2014: Réaction  $\alpha + \text{Th-232}$
- Seuils de réaction
  - $\approx 50$  MeV pour Ac-225 et Ra-225
  - $\approx 100$  MeV pour Bi-213
- Calcul FISPACT-II :
  - Cible de Thorium naturel de 0,05 cm telle que  $E_{\text{sortie}} \approx 50$  MeV
  - $I=200\mu\text{A}$  ( $6,2e14 \alpha/\text{s}$ )
  - $T_{\text{irr}}=1$  et 10 j



	80 MeV	
	A(Bq/g)	% Atot
Irradiation 1j	1,24E+08	0,39%
Irradiation 10 j	9,30E+08	0,495%

⇒ Mesures inédites section-efficaces pour vérifier (contraindre) les codes de calcul

- Les futurs faisceaux de SPIRAL-2 offrent des opportunités pour la R&D sur les radioisotopes
- GANIL se consacre uniquement à l'irradiation de cibles → collaborations
- Astate (avec ARRONAX):
  - ▣ Mesure de  $\alpha$   $+^{209}\text{Bi}$  et  $^{6,7}\text{Li}+^{209}\text{Bi}$  à NFS; impuretés
  - ▣ Station d'irradiation pour cible Bi en construction
  - ▣ Etude d'une cible haute puissance pour le Bi
  - ▣ Long terme: cible liquide avec extraction en ligne du Rn-211
  - ▣ Etudier et résoudre les problèmes de sûreté, transport, autorisation, main d'œuvre...
- Autres émetteurs alpha : Bi-213, Pb-212:
  - ▣ Etude de production en réaction  $\alpha + ^{232}\text{Th}$
  - ▣ Mesure de section efficace  $\leftrightarrow$  données nucléaires

# Appels à projets

- ANR sur cibles Haute Puissance
  - collaboration ISTCT/CYCERON, ARRONAX, SUBATECH, GANIL
  
- JRA (Medical Isotope from Accelerator) dans ERINS (nom du successeur de ENSAR) collaboration sur 3 WPs:
  - accélération laser pour radioéléments (ELI-NP, USC, CSIC, CEA)
  - cibles HP (INFN, ARRONAX, SUBATECH, NPI, GANIL)
  - from target to isotope (HIL, INFN, ARRONAX, SUBATECH, GANIL)