COLLEGE DOCTORAL PAYS DE LA LOIRE | ED MATIERE, MOLECULES, MATERIAUX & GEOSCIENCES

Nantes Université

THESE DE DOCTORAT DE

NANTES UNIVERSITE

ECOLE DOCTORALE N° 596
Matière, Molécules, Matériaux et Géosciences
Spécialité : *« Physique »*

Par

Vanessa RHODEN

Manufacture and Characterization of Lanthanides Targets for the Production of Radionuclides for Nuclear Medicine

Unité de recherche : SUBATECH, UMR 6457 et GIP ARRONAX

Rapporteurs avant soutenance :

Renata MIKOLAJCZAK National Centre for Nuclear Research, Poland
Bernd NEUMAIER University Hospital Cologne, Germany

Composition du Jury :

Président :	Prénom Nom	Fonction et établissement d'exercice (8)	*(à préciser après la soutenance)*
Examinateurs :	Prénom Nom	Fonction et établissement d'exercice	(8)
	Zeynep TALIP	Chercheuse de Paul Scherrer Institute	
	Gilles DE FRANCE	Professeur de GANIL	
Dir. de thèse :	Férid HADDAD	Directeur de GIP ARRONAX et professeur de Nantes Université	
Co-dir. de thèse :	Thomas SOUNALET	Chargé de recherche, Subatech, UMR 6457, IMT Atlantique, CNRS/IN2P3	
	Nathalie MICHEL	Ingénieur de recherche, Subatech, UMR 6457, IMT Atlantique, CNRS/IN2P3	

COLLEGE DOCTORAL PAYS DE LA LOIRE
ED MATIERE, MOLECULES, MATERIAUX & GEOSCIENCES

Nantes Université

Titre : Fabrication et caractérisation de cibles à base de lanthanides pour la production de radionucléides destinés à la médecine nucléaire

Mots clés : Production de radionucléides ; cibles de lanthanides ; technique de *molecular plating* ; mesure de sections efficaces ; théranostique ; radionucléides produits par cyclotron.

Résumé : La médecine nucléaire repose sur l'utilisation de radionucléides à des fins diagnostiques et thérapeutiques, ce qui nécessite des données nucléaires fiables et des cibles bien caractérisées. Ce travail porte sur le développement et la caractérisation de cibles solides à base de lanthanides pour l'irradiation par des particules chargées, avec un intérêt particulier pour la mesure de sections efficaces nucléaires et la production de radionucléides. La technique de dépôt par *Molecular Plating* (MP) a été étudiée et optimisée systématiquement en utilisant le gadolinium comme élément modèle. L'influence de différents paramètres de dépôt, notamment la tension appliquée, la vitesse d'agitation, le solvant, le substrat, la masse de matériau et le temps de dépôt, a été étudiée, permettant d'établir une procédure optimisée utilisant l'isopropanol, une agitation contrôlée et une tension appliquée de 300 V. La méthodologie a ensuite été étendue à plusieurs lanthanides (Dy, Tb, Ho, La, Sm, Yb, Er, Eu et Ce), démontrant sa large applicabilité tout en mettant en évidence des différences de comportement de dépôt selon les éléments. Des cibles de gadolinium ont été irradiées par des protons et des particules α auprès du cyclotron ARRONAX afin d'étudier trois voies de production du ^{155}Tb : ^{nat}Gd(p,x)^{155}Tb, ^{155}Gd(p,x)^{155}Tb et ^{156}Gd(α,xn)^{155}Tb. Les résultats ont montré que les voies de production doivent être évaluées en considérant non seulement le rendement en ^{155}Tb, mais également pureté radionucléidique, la composition isotopique, l'énergie des particules incidentes et la formation d'impuretés radionucléidiques à longue période. Parmi les voies étudiées, ^{155}Gd(p,n)^{155}Tb a fourni la voie de production la plus équilibrée, avec des puretés radionucléidiques supérieures à 91 % et des rendements de production allant jusqu'à 3,96 MBq·(µAh)$^{-1}$. L'enrichissement isotopique a permis de réduire significativement le rapport ^{156}Tb/^{155}Tb, passant de 39,2–80,9 % pour le Gd naturel à 5,25–8,93 % pour le matériau enrichi en ^{155}Gd. La voie ^{156}Gd(α,xn)^{155}Tb a également été étudiée via le précurseur ^{155}Dy, mettant en évidence le potentiel de la séparation du précurseur pour améliorer la composition radionucléidique. Les rendements en cible épaisse ont été déterminés à partir des fonctions d'excitation mesurées afin d'évaluer davantage le potentiel de production des réactions étudiées. En parallèle, l'optimisation et le suivi du faisceau ont permis d'améliorer la reproductibilité des irradiations en réduisant l'inhomogénéité du faisceau de 7,13 ± 1,01 % à 3,45 ± 0,30 %. Dans l'ensemble, la méthodologie de dépôt par placage moléculaire développée a permis d'obtenir des cibles homogènes et présentant une bonne adhérence, adaptées aux irradiations par particules chargées, aux mesures de sections efficaces nucléaires et à l'évaluation des voies de production de radionucléides du terbium.

Title : Manufacture and Characterization of Lanthanides Targets for the Production of Radionuclides for Nuclear Medicine

Keywords : Radionuclide production; Lanthanides target; MP technique; Cross section measurement; Theragnostic; Cyclotron-produced radionuclide.

Abstract : Nuclear medicine relies on radionuclides for diagnosis and treatment, requiring reliable nuclear data and well-characterized target materials. This work focuses on the development and characterization of solid lanthanide targets for charged-particle irradiation, with emphasis on nuclear cross section measurements and radionuclide production. Molecular plating was investigated and systematically optimized using gadolinium as a model element. The effects of deposition parameters, including applied voltage, stirring rate, solvent, substrate, target mass, and deposition time, were evaluated, leading to an optimized procedure based on isopropanol, controlled agitation, and an applied voltage of 300 V. The methodology was subsequently extended to several lanthanides (Dy, Tb, Ho, La, Sm, Yb, Er, Eu, and Ce), demonstrating its broad applicability while highlighting element-dependent differences in deposition behavior. Gadolinium targets were irradiated with protons and α particles at the ARRONAX cyclotron to investigate three production pathways for ^{155}Tb: ^{nat}Gd(p,x)^{155}Tb, ^{155}Gd(p,x)^{155}Tb, and ^{156}Gd(α,xn)^{155}Tb. The results showed that production routes must be evaluated considering not only ^{155}Tb yield, but also radionuclidic purity, isotopic composition, projectile energy, and long-lived impurities. Among the investigated routes, ^{155}Gd(p,n)^{155}Tb provided the most balanced production pathway, with radionuclidic purities above 91% and production yields up to 3.96 MBq·(µAh)$^{-1}$. Isotopic enrichment significantly reduced the ^{156}Tb/^{155}Tb ratio, from 39.2–80.9% for natural Gd to 5.25–8.93% for ^{155}Gd-enriched material. The ^{156}Gd(α,xn)^{155}Tb pathway was also investigated through the ^{155}Dy precursor, highlighting the potential of precursor separation to improve radionuclidic composition. Thick-target yields were determined from the measured excitation functions to further assess the production potential of the investigated reactions. In parallel, beam tuning and monitoring improved irradiation reproducibility by reducing beam inhomogeneity from 7.13 ± 1.01% to 3.45 ± 0.30%. Overall, the developed molecular plating methodology provided well-adhered and homogeneous targets suitable for charged-particle irradiation, nuclear cross section measurements, and the evaluation of terbium radionuclide production routes.