

Experimentelle Bestimmung der Wirkungsquerschnitte von Kernreaktionen mit geladenen Teilchen ($^1\text{H}^+$, $^4\text{He}^{2+}$, $^7\text{Li}^{3+}$) auf Zirkonium, Niob und Technetium



Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades

der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität zu Köln

vorgelegt von

Andreas Dragoun

2026

Die vorliegende Arbeit wurde im Zeitraum von September 2023 bis Juli 2026 in der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln sowie am Institut für Neurowissenschaften und Medizin (INM) – Nuklearchemie (INM-5) am Forschungszentrum Jülich GmbH angefertigt.



UNIVERSITÄT
ZU KÖLN



Diese Arbeit ist Teil des Verbundprojekts *99MoBest*, das vom Bundesministerium für Forschung, Technologie und Raumfahrt (BMFTR) unter dem Förderkennzeichen 02NUK080A gefördert und vom Projektträger Karlsruhe (PTKA) betreut wurde.

Gefördert durch:



Bundesministerium
für Forschung, Technologie
und Raumfahrt



PTKA
Projektträger Karlsruhe
Karlsruher Institut für Technologie

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Bedeutung
AMS	Accelerator mass spectrometry (Beschleuniger-Massenspektrometrie)
EC	Electron capture (Elektroneneinfang)
EOB	End of bombardment (Ende der Bestrahlung)
HBS	Jülich high brilliance neutron source
HEU	High-enriched uranium (hochangereichertes Uran)
HPGe	High purity germanium (hochreines Germanium)
HSA	High-specific activity (hohe spezifische Aktivität)
IT	Isomeric transition (isomerer Übergang)
LSA	Low-specific activity (niedrige spezifische Aktivität)
LSC	Liquid scintillation counting (Flüssigszintillationsmessung)
RBS	Rutherford backscattering spectrometry (Rutherford-Rückstreu-Spektrometrie)
SPECT	Single-photon emission computed tomography (Einzelphotonen-Emissionscomputertomographie)
TENDL	TALYS-based evaluated nuclear data library
VE-Wasser	Vollentsalztes Wasser

Kurzzusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden die Wirkungsquerschnitte von Kernreaktionen mit geladenen Teilchen ($^1\text{H}^+$, $^4\text{He}^{2+}$, $^7\text{Li}^{3+}$) auf Zirkonium, Niob und Technetium experimentell bestimmt. Die Bestrahlungen der $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ - und $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,\text{x})^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ -Reaktionen wurden am JSW Baby-Zyklotron BC 1770 bzw. am IBA Cyclone 30 XP-Zyklotron des INM-5 am Forschungszentrum Jülich durchgeführt. Die experimentellen Wirkungsquerschnitte dieser Reaktionen wurden mit Literaturdaten sowie mit theoretischen TALYS-Berechnungen und TENDL-Daten verglichen. Die Ermittlung der integralen Ausbeuten zeigte, dass durch diese Reaktionen genügend hohe Aktivitäten von $^{93\text{m}}\text{Mo}$ und ^{99}Mo produziert werden können, um sie in Trennungsexperimenten zur Optimierung des $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Generators für ^{99}Mo mit geringer spezifischer Aktivität (LSA- ^{99}Mo) einzusetzen. Zusätzlich wurde auf Grundlage von Literaturdaten und unter Verwendung von ^{90}Nb als Tracernuklid ein Trennungsverfahren zur Abtrennung von ^{93}Mo aus dem Niobtargetmaterial entwickelt. Auf dieser Grundlage konnte eine $^{93\text{g}}\text{Mo}$ -Standardlösung für die Beschleuniger-Massenspektrometrie auf der Basis der $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93}\text{Mo}$ -Reaktion hergestellt werden. Das in der Nuklearmedizin eingesetzte Radionuklid ^{103}Pd wurde erstmals durch die Bestrahlung von ^{99}Tc mit ^7Li erzeugt, wobei die Wirkungsquerschnitte der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ -Reaktion im Energiebereich von 20 bis 34 MeV bestimmt wurden. Das ^{99}Tc -Target wurde durch Elektrolyse einer Ammoniumpertechnetat-Lösung auf Goldfolie abgeschieden. Die abgeschiedene Menge von ^{99}Tc wurde mittels Rutherford-Rückstreu-Spektrometrie (RBS) ermittelt. Die Bestrahlungen erfolgten am 10 MV FN-Tandem-Beschleuniger des Instituts für Kernphysik der Universität zu Köln mit $^7\text{Li}^{3+}$ -Ionen. Die Anzahl der erzeugten ^{103}Pd -Kerne wurde durch die Messung von prompter Gammastrahlung, die von angeregten ^{103}Pd -Kernen während der Bestrahlung emittiert wird, bestimmt. Die daraus berechnete Anregungsfunktion zeigt ein Maximum bei

30 MeV. Der Wirkungsquerschnitt steigt bei 34 MeV wieder an, was vermutlich auf einen Beitrag der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},4\text{n})^{102}\text{Pd}$ -Reaktion zurückzuführen ist.

Brief Summary

This work determined the cross-sections of nuclear reactions involving charged particles ($^1\text{H}^+$, $^4\text{He}^{2+}$, $^7\text{Li}^{3+}$) on zirconium, niobium and technetium experimentally. The irradiations of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ und $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,\text{x})^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ reactions were carried out at the JSW Baby Cyclotron BC 1770 and the IBA Cyclone 30 XP cyclotron, respectively, at the INM-5 at Forschungszentrum Jülich. The experimental cross-sections of these reactions were compared with literature data, as well as with theoretical TALYS calculations and TENDL data. Determination of the integral yields showed that these reactions can produce sufficiently high $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and ^{99}Mo activities for use in separation experiments optimizing the $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator for ^{99}Mo with low-specific activity (LSA ^{99}Mo). Additionally, a separation process for ^{93}Mo from niobium target material was developed based on literature studies and by using ^{90}Nb as a tracer nuclide. A $^{93\text{g}}\text{Mo}$ standard solution for AMS studies was then prepared using the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93}\text{Mo}$ reaction. The radionuclide ^{103}Pd , which is used in nuclear medicine, was produced for the first time by irradiating ^{99}Tc with ^7Li . The cross-sections of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction were determined in the energy range from 20 to 34 MeV. The ^{99}Tc target was deposited onto gold foil by electrolysis of a ammonium pertechnetate solution. The amount of ^{99}Tc deposited was determined by Rutherford backscattering spectrometry (RBS) measurements. Irradiations were carried out at the 10 MV FN Tandem Accelerator at the Institute of Nuclear Physics, University of Cologne, using $^7\text{Li}^{3+}$ ions. The number of ^{103}Pd nuclei produced was determined by measuring prompt gamma radiation emitted from excited ^{103}Pd during irradiation. The excitation function calculated from these data shows a maximum at 30 MeV. The cross-section rises again at 34 MeV, which is thought to be due to a contribution from the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},4\text{n})^{102}\text{Pd}$ reaction.

Inhaltsverzeichnis

1	<u>Einleitung</u>	1
1.1	Das Verbundprojekt <i>99MoBest</i>	1
1.2	Zerfallseigenschaften der betrachteten Radionuklide.....	4
1.2.1	Zerfallseigenschaften von $^{93m/g}\text{Mo}$ und ^{93m}Nb	4
1.2.2	Zerfallseigenschaften von ^{90}Nb	6
1.2.3	Zerfallseigenschaften von ^{99}Mo und ^{99}Tc	7
1.2.4	Zerfallseigenschaften von ^{103}Pd	8
1.3	Gegenstand der Arbeit	10
2	<u>Veröffentlichungen und Manuskripte</u>	16
2.1	Veröffentlichung 1: Cross-section measurements of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93m}\text{Mo}$ reaction up to 17 MeV	17
2.1.1	Angaben zur Veröffentlichung.....	17
2.1.2	Zusammenfassung der Veröffentlichung	18
2.1.3	Eigene Beiträge zur Veröffentlichung	19
2.1.4	Manuskript	20
2.2	Veröffentlichung 2: Cross-section measurements of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,\text{x})^{93m/99}\text{Mo}$ reactions up to 30 MeV	38
2.2.1	Angaben zur Veröffentlichung.....	38
2.2.2	Zusammenfassung der Veröffentlichung	39
2.2.3	Eigene Beiträge zur Veröffentlichung	40
2.2.4	Manuskript	41
2.3	Veröffentlichung 3: First production of the medical radionuclide ^{103}Pd from ^{99}Tc and determination of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ nuclear reaction cross-sections between 20 and 34 MeV.....	64
2.3.1	Angaben zur Veröffentlichung.....	64
2.3.2	Zusammenfassung der Veröffentlichung	65
2.3.3	Eigene Beiträge zur Veröffentlichung	66
2.3.4	Manuskript	67
3	<u>Weitere Arbeiten: Chemische Trennungen</u>	86
3.1	Einleitung	86
3.2	Experimenteller Teil.....	87
3.2.1	Produktion von ^{90}Nb und chemische Trennung vom Zirkonium-Targetmaterial.	88
3.2.2	Produktion von ^{93m}Mo und chemische Trennung vom Niob-Targetmaterial	89

3.3	Ergebnisse der chemischen Trennungen	91
<u>4</u>	<u>Zusammenfassung und Diskussion</u>	<u>97</u>
<u>5</u>	<u>Literaturverzeichnis</u>	<u>101</u>
<u>6</u>	<u>Eingesetzte Hilfsmittel</u>	<u>105</u>
<u>7</u>	<u>Verfügbarkeit der Rohdaten</u>	<u>105</u>
<u>8</u>	<u>Danksagung</u>	<u>106</u>

1 Einleitung

1.1 Das Verbundprojekt *99MoBest*

Das Verbundprojekt *99MoBest* wurde im Jahr 2023 vom Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) (seit 2025 Bundesministerium für Forschung, Technologie und Raumfahrt, BMFTR) in Kooperation mit der Universität zu Köln, der FH Aachen – University of Applied Sciences und der Leibniz Universität Hannover im Rahmen der Nuklearen Sicherheits- und Strahlenforschung (NukSi) ins Leben gerufen. Ziel des Projekts war die Entwicklung eines neuartigen Konzepts zur beschleunigergetriebenen Erzeugung des Radionuklids ^{99}Mo (Halbwertszeit 65,9 Stunden) mittels einer beschleunigerbasierten Neutronenquelle. Dabei wird ^{99}Mo durch Neutroneneinfang von natürlichem Molybdän gebildet. ^{99}Mo geht durch β^- -Zerfall in $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (Halbwertszeit 6,0 Stunden) über. Die beim Übergang vom angeregten isomeren Zustand $^{99\text{m}}\text{Tc}$ in den Grundzustand ^{99}Tc freigesetzte Gammastrahlung (Energie von 140 keV) kann für die medizinische Bildgebung (single-photon emission computed tomography, SPECT) eingesetzt werden. Technetium kann eine Vielzahl von Oxidationsstufen und Koordinationsverbindungen bilden. Dank seiner vielseitigen Koordinationseigenschaften kann Technetium an zahlreiche Moleküle gekoppelt werden, wodurch viele diagnostische Anwendungen in der Nuklearmedizin möglich werden [1]. Aufgrund dieser Eigenschaften ist $^{99\text{m}}\text{Tc}$ das am häufigsten eingesetzte medizinische Radionuklid mit ca. 30 bis 40 Millionen Anwendungen weltweit [2], davon ca. 60.000 wöchentlich in Deutschland [3]. Mögliche Anwendungsgebiete sind unter anderem die Bildgebung der Schilddrüse, der Nieren und der Knochen sowie die Darstellung der Herz- und Lungendurchblutung [4]. ^{99}Mo wird überwiegend durch Spaltung von hoch angereichertem ^{235}U (HEU) mit Neutronen in Kernreaktoren (in der Regel Forschungsreaktoren) erzeugt. Die Aufarbeitung des bestrahlten Targetmaterials führt jedoch zur Entstehung großer Mengen radioaktiver Abfälle. Zudem ist die Verwendung von hoch

angereichertem Uran aufgrund des Proliferationsrisikos kritisch zu bewerten. In der Vergangenheit führten Wartungsarbeiten an den wenigen zur Erzeugung von ^{99}Mo geeigneten Reaktoren und ungeplante Reaktorabschaltungen immer wieder zu Engpässen in der weltweiten Versorgung mit ^{99}Mo [4,5]. Diese Nachteile machen deutlich, dass alternative Herstellungsmethoden für ^{99}Mo entwickelt werden müssen. Weltweit wurde bereits an alternativen Methoden geforscht. Ausführliche Übersichten und Vergleiche der verschiedenen Produktionsmethoden für $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ wurden publiziert [2,4,6]. Im Rahmen des Verbundprojekts *99MoBest* sollte ein Konzept für die beschleunigergetriebene Bestrahlung von $^{\text{nat}}\text{Mo}$ mit epithermischen Neutronen erarbeitet werden. Dieses Konzept könnte im Rahmen der geplanten Jülich High Brilliance Neutron Source (HBS) [7] umgesetzt werden. In diesem Konzept werden Neutronen durch die Bestrahlung eines Tantal-Neutronentargets mit Protonen erzeugt. In einer speziellen Targetkammer werden Platten aus natürlichem Molybdän mit diesen Neutronen bestrahlt, um über die $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ -Reaktion ^{99}Mo zu erzeugen. Ziel ist es, ausreichend ^{99}Mo zu produzieren, um den deutschen Bedarf zu decken. Da natürliches Molybdän als Targetmaterial verwendet wird, entsteht ^{99}Mo mit geringer spezifischer Aktivität (LSA) und nicht, wie bei der Spaltung von ^{235}U im Kernreaktor, mit hoher spezifischer Aktivität (HSA). Dieser Umstand erfordert eine Anpassung des etablierten $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Generators, der in der nuklearmedizinischen Praxis als Quelle für $^{99\text{m}}\text{Tc}$ verwendet wird. In den Standard- $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Generatoren wird ^{99}Mo aus Spalturan verwendet, da es hierbei in sehr geringen Stoffmengen vorliegt. Dadurch wird zum einen ein Durchbruch von ^{99}Mo durch das Säulenmaterial verhindert und zum anderen die Größe der Säule und damit des gesamten Generators minimiert. Die Nutzung von LSA- ^{99}Mo erfordert unter anderem Optimierungen des Säulenmaterials, des Elutionsprozesses sowie Maßnahmen zur Reduktion des Molybdändurchbruchs [8]. Um den üblichen etablierten Ablauf in den Kliniken und nuklearmedizinischen Praxen nicht zu sehr zu beeinträchtigen und um das vorhandene Generatordesign weiter nutzen zu können, sollten nur geringe Änderungen vorgenommen werden.

Das Verbundprojekt gliederte sich in drei Teilprojekte. Teilprojekt 1 (Universität zu Köln und Forschungszentrum Jülich) befasste sich mit der Chemie des bestrahlten Molybdäns, dessen Prozessierung, der Anpassung des $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Generators sowie der Herstellung von ^{99}Mo und $^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Tracern am Zyklotron und der Messung der zugehörigen nuklearen Reaktionswirkungsquerschnitte. Teilprojekt 2 (FH Aachen – University of Applied Sciences) erarbeitete ein Konzept für die Neutronenbestrahlung des Molybdäns (Tantal-Neutronentarget, Molybdäntarget, Moderator, Reflektor) sowie für die automatisierte Handhabung und den Transport. Teilprojekt 3 (Leibniz Universität Hannover) befasste sich mit Fragen zum Strahlenschutz und zur Entsorgung anfallender radioaktiver Abfälle. Die vorliegende Arbeit ist dem Teilprojekt 1 zuzuordnen.

1.2 Zerfallseigenschaften der betrachteten Radionuklide

1.2.1 Zerfallseigenschaften von $^{93\text{m/g}}\text{Mo}$ und $^{93\text{m}}\text{Nb}$

Das Radionuklid ^{93}Mo besitzt den angeregten, isomeren Zustand $^{93\text{m}}\text{Mo}$, der mit einer Halbwertszeit von 6,85 Stunden entweder durch isomeren Übergang (IT, 99,88 %) in den Grundzustand $^{93\text{g}}\text{Mo}$ oder durch Elektroneneinfang (EC, 0,12 %) in ^{93}Nb zerfällt [9]. Der Grundzustand $^{93\text{g}}\text{Mo}$ weist eine Halbwertszeit von 4000 Jahren auf und zerfällt durch Elektroneneinfang (EC, 100 %) [9] sowohl in den metastabilen Zustand $^{93\text{m}}\text{Nb}$ als auch in den stabilen Grundzustand $^{93\text{g}}\text{Nb}$. Das vereinfachte Zerfallsschema ist in Abbildung 1 dargestellt. Zur Bestimmung der Aktivität von $^{93\text{m}}\text{Mo}$ eignen sich im Wesentlichen drei Gammaenergien des isomeren Übergangs (263 keV, 685 keV und 1477 keV), da diese über genügend hohe Intensitäten verfügen (57,4 %, 99,9 % und 99,1 %) [9]. Die Bestimmung der Aktivität des Grundzustands $^{93\text{g}}\text{Mo}$ ist mittels Gammaspektroskopie nicht möglich, da der isomere Übergang von $^{93\text{m}}\text{Nb}$ zu $^{93\text{g}}\text{Nb}$ (30,8 keV) eine zu geringe Intensität von 0,00059 % aufweist [9]. $^{93\text{m}}\text{Nb}$ zerfällt durch isomeren Übergang in den stabilen Grundzustand $^{93\text{g}}\text{Nb}$. Mittels Röntgenspektroskopie könnte die Aktivität von $^{93\text{g}}\text{Mo}$ bestimmt werden. Dies setzt jedoch voraus, dass das Zerfallsprodukt $^{93\text{m}}\text{Nb}$ vor der Messung komplett abgetrennt wurde, da beide Radionuklide dieselbe Röntgenstrahlung (16,521 keV ($K_{\alpha 2}$), 16,615 keV ($K_{\alpha 1}$), 18,607 keV ($K_{\beta 3}$), und 18,623 keV ($K_{\beta 1}$)) [10] emittieren. Eine weitere Methode zur qualitativen und quantitativen Bestimmung von $^{93\text{g}}\text{Mo}$ ist die Messung von Konversions- bzw. Auger-Elektronen mittels LSC [10-12]. Auch hierfür ist eine vorherige chemische Abtrennung von $^{93\text{g}}\text{Mo}$ von $^{93\text{m}}\text{Nb}$ erforderlich, da sich die LSC-Signale von $^{93\text{m}}\text{Mo}$ und $^{93\text{m}}\text{Nb}$ überlappen [12].

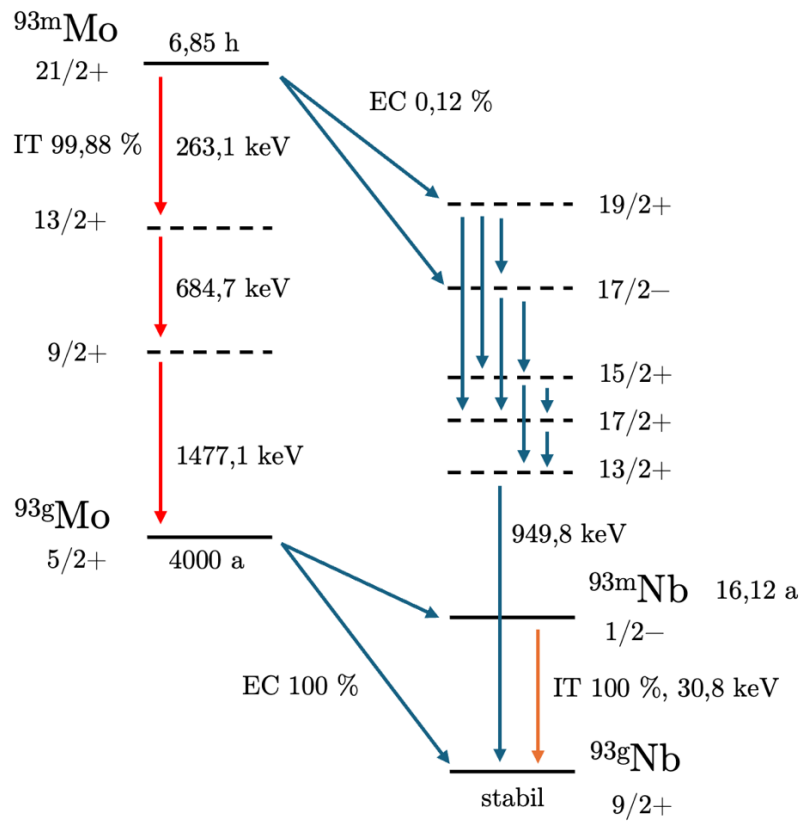


Abbildung 1 Vereinfachtes Zerfallsschema des Radionuklids $^{93\text{m/g}}\text{Mo}$, basierend auf den Daten von [9] (Werte gerundet).

1.2.2 Zerfallseigenschaften von ^{90}Nb

Das Radionuklid ^{90}Nb besitzt eine Halbwertszeit von 14,6 Stunden und zerfällt durch Elektroneneinfang bzw. Betapluszerfall (100 %) in ^{90}Zr (stabil) [13]. Dabei kommt es zur Emission von Gammastrahlung, darunter die drei intensivsten Gammaenergien mit 141,2 keV (66,8 %), 1129,2 keV (92,7 %) und 2319,0 keV (82,0 %) [13]. Das vereinfachte Zerfallsschema von ^{90}Nb ist in Abbildung 2 gezeigt.

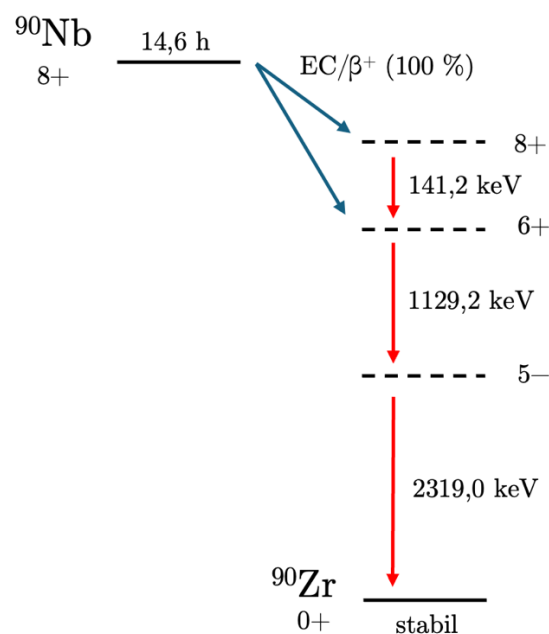


Abbildung 2 Vereinfachtes Zerfallsschema des Radionuklids ^{90}Nb , basierend auf den Daten von [13] (Werte gerundet).

1.2.3 Zerfallseigenschaften von ^{99}Mo und ^{99}Tc

Das Radionuklid ^{99}Mo zerfällt mit einer Halbwertszeit von 65,9 Stunden durch Betaminuszerfall (100 %) in den metastabilen Zustand $^{99\text{m}}\text{Tc}$ [14]. Dieser wiederum geht mit einer Halbwertszeit von 6,0072 Stunden durch isomeren Übergang (99,9963 %) in den Grundzustand ^{99}Tc über oder zerfällt durch Betaminuszerfall (0,0037 %) in das stabile ^{99}Ru [14]. Mit einer Halbwertszeit von $2,111 \cdot 10^5$ Jahren zerfällt ^{99}Tc ebenfalls in ^{99}Ru [14]. Der isomere Übergang von $^{99\text{m}}\text{Tc}$ zu ^{99}Tc erfolgt durch Emission von Gammastrahlung mit einer Energie von 140,5 keV und einer Intensität von 89 % [14]. Diese Gammastrahlung wird in der medizinischen Diagnostik zur Bildgebung verwendet. Die Aktivität von ^{99}Mo kann auch ausgehend von den Gammaenergien 739,5 keV (12,2 % Intensität) oder 777,9 keV (4,3 % Intensität) [14] bestimmt werden. In Abbildung 3 ist ein vereinfachtes Zerfallsschema für ^{99}Mo bzw. ^{99}Tc angegeben.

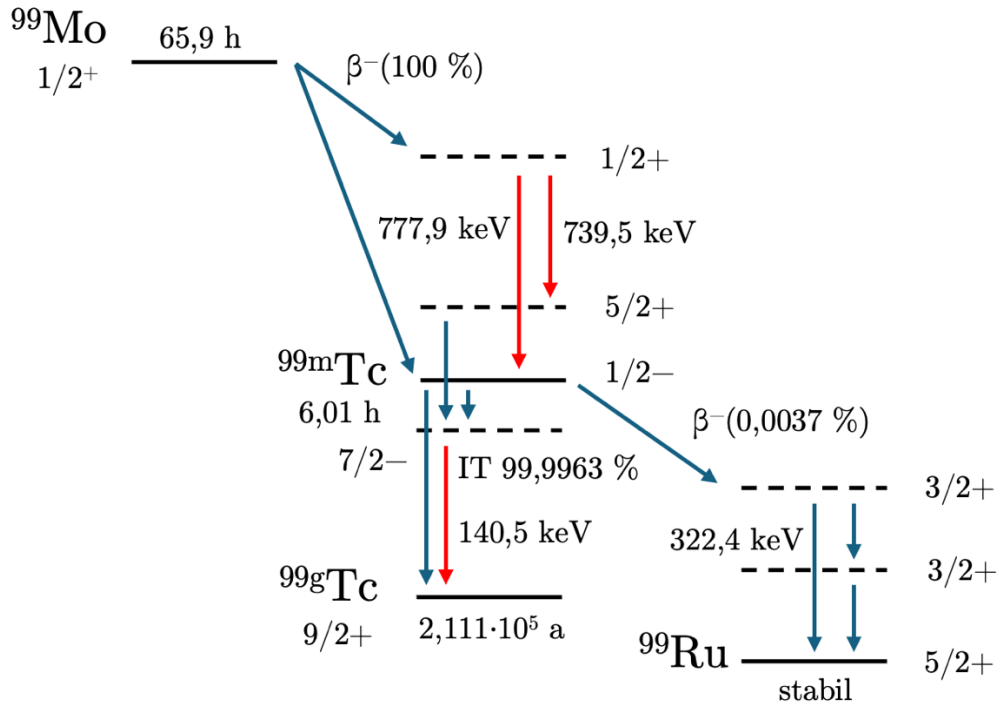


Abbildung 3 Vereinfachtes Zerfallsschema der Radionuklide ^{99}Mo und $^{99\text{m}}\text{Tc}$, basierend auf den Daten von [14] (Werte gerundet).

1.2.4 Zerfalleigenschaften von ^{103}Pd

Das Radionuklid ^{103}Pd hat eine Halbwertszeit von 16,99 Tagen und zerfällt durch Elektroneneinfang (100 %) in $^{103\text{m}}\text{Rh}$, welches mit einer Halbwertszeit von 56,1 Minuten durch einen isomeren Übergang in den stabilen Grundzustand ^{103}Rh übergeht [15]. Dabei wird niederenergetische Gammastrahlung (39,8 keV) mit sehr geringer Intensität (0,068 %) emittiert [15], die sich deshalb nicht zur Aktivitätsmessung eignet. Als Folge des Elektroneneinfangs kommt es zur Emission von Röntgenstrahlung sowie zur Emission von Konversions- und Auger-Elektronen. Die medizinische Anwendung dieser Auger-Elektronen in der targeted radionuclide therapy (TRT) ist Gegenstand aktueller Forschung [16]. Außerdem findet ^{103}Pd medizinische Anwendung in der Brachytherapie zur Behandlung von Prostatakarzinomen [17-19].

Eine Möglichkeit, die Anzahl von ^{103}Pd -Kernen während der Herstellung am Beschleuniger zu bestimmen, ist die Messung der nuklidspezifischen prompten Gammastrahlung, die von angeregten Produktkernen während der Bestrahlung emittiert wird. Alle energetisch höher angeregten Zustände werden in einem der drei Zustände mit einer Energie von 718,02 keV, 243,959 keV oder 531,972 keV gesammelt, bevor der Übergang in den Grundzustand erfolgt (siehe Abbildung 4). Die Summe dieser drei Übergänge in den Grundzustand ist ein Maß für die Gesamtzahl an ^{103}Pd -Kernen unter der Annahme, dass bei der Bestrahlung nur angeregte ^{103}Pd -Kerne gebildet werden und der Grundzustand nicht direkt bevölkert wird.

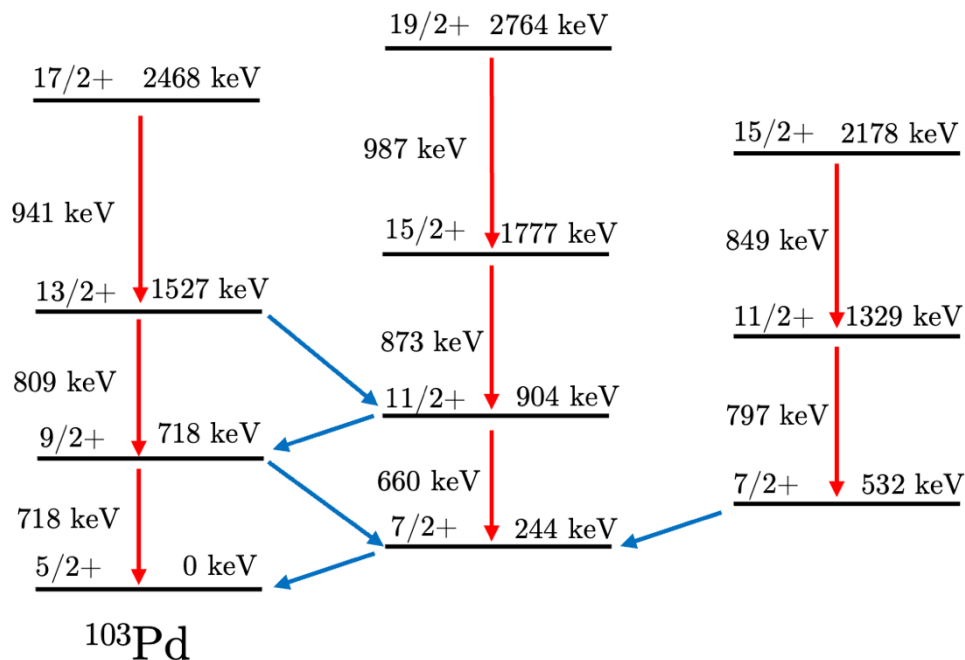


Abbildung 4 Vereinfachtes Kernniveauschema des Radionuklids ^{103}Pd , basierend auf den Daten von [15] (Werte gerundet).

1.3 Gegenstand der Arbeit

Zentrales Thema dieser Arbeit ist die experimentelle Messung von Wirkungsquerschnitten von Kernreaktionen mit unterschiedlichen geladenen Teilchen. Der Wirkungsquerschnitt stellt ein Maß für die Wahrscheinlichkeit dar, dass eine Kernreaktion eintritt und besitzt die Einheit Barn b (1 b entspricht $1\cdot 10^{-24}\text{ cm}^2$) [20]. Die Auftragung von Wirkungsquerschnitten σ über der Partikelenergie E wird als Anregungsfunktion einer Kernreaktion bezeichnet. Hier wurden Kernreaktionen ausgewählt, die ^{93m}Mo und bzw. oder ^{99}Mo liefern und mit den am Institut für Neurowissenschaften und Medizin – Nuklearchemie (INM-5) am Forschungszentrum Jülich vorhandenen Zyklotronen zugänglich sind. ^{93m}Mo kann als Tracernuklid in Experimenten zur chemischen Trennung von ^{99}Mo mit niedriger spezifischer Aktivität im $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ -Generatorsystem eingesetzt werden. Zur Herstellung von ^{93m}Mo fiel die Wahl auf die $^{93}\text{Nb}(p,n)^{93m}\text{Mo}$ - und $^{nat}\text{Zr}(\alpha,x)^{93m/99}\text{Mo}$ -Reaktionen. Wobei letztere neben ^{93m}Mo auch ^{99}Mo liefert. Durch Abtrennung von ^{93m}Mo und ^{99}Mo vom Zirkonium-Targetmaterial und Hinzufügen von ^{nat}Mo , kann ^{99}Mo mit niedriger spezifischer Aktivität erhalten werden. Die in der Literatur verfügbaren Wirkungsquerschnitte und dieser Reaktionen weisen teilweise erhebliche Unsicherheiten auf oder liegen für bestimmte Energiebereiche nicht vor. Daher waren neue Messungen erforderlich. Ebenso sollte durch die Bestimmung der integralen Reaktionsausbeuten ermittelt werden, ob mit diesen Kernreaktionen ausreichend hohe Aktivitäten an ^{93m}Mo und ^{99}Mo erzeugt werden können. Neben der Anwendung des metastabilen Zustands ^{99m}Tc in der nuklearmedizinischen Diagnostik, kann der Grundzustand ^{99}Tc dazu verwendet werden, das in der nuklearmedizinischen Therapie eingesetzte Radionuklid ^{103}Pd über die $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3n)^{103}\text{Pd}$ -Reaktion herzustellen. Dies wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmalig durchgeführt und die Wirkungsquerschnitte dieser Reaktion experimentell bestimmt.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich im Wesentlichen in vier Teile:

In der ersten Veröffentlichung wurden die Wirkungsquerschnitte der $^{93}\text{Nb}(p,n)^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion durch die Bestrahlung von Niobfolie mit Protonen am Zyklotron im Energiebereich bis 17 MeV durch die Stacked-Target-Methode [21] experimentell bestimmt. Abbildung 5 zeigt den Aufbau eines Targetstacks in einer Skizze.

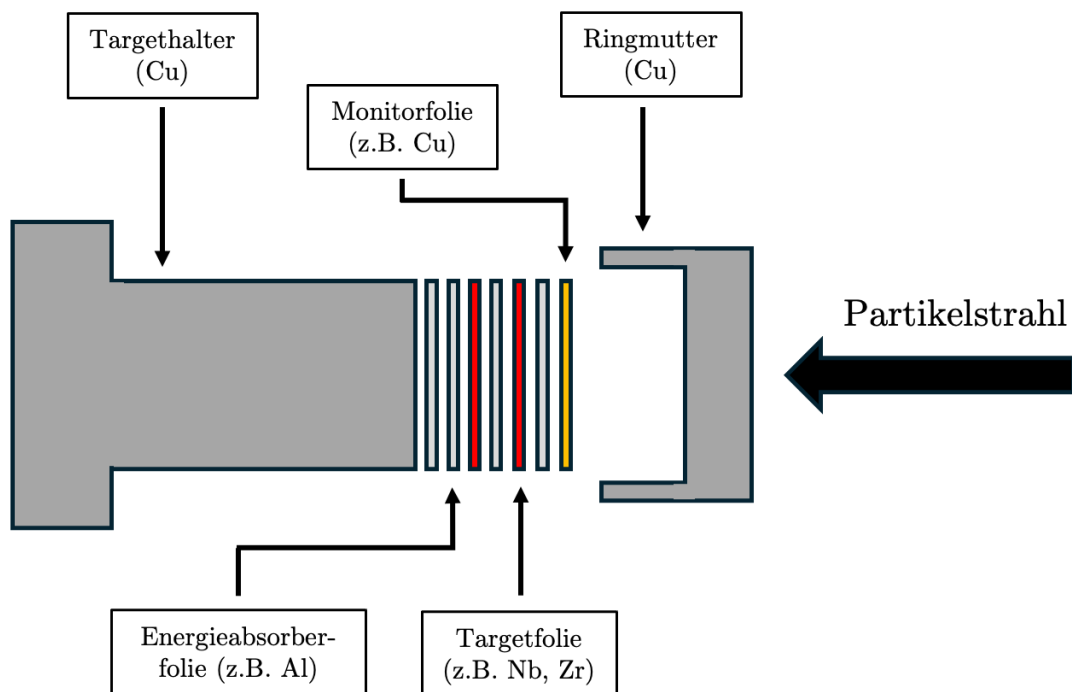


Abbildung 5 Skizze eines Targetstacks bestehend aus Targethalter und Ringmutter (beide aus Kupfer), dazwischen ein Stapel aus Metallfolien (Targetfolie, Monitorfolie, Energieabsorberfolie). Absorberfolien am Ende des Folienstapels dienen als Strahlstopp, um die Aktivierung der Halterung gering zu halten. Der Partikelstrahl des Zyklotrons trifft von rechts auf das Target. Die Wasserkühlung erfolgt am linken Ende der Targethalterung.

Die Eingangsenergie der Protonen und der Partikelfluss wurden mithilfe der $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{62/63}\text{Zn}$ -Monitorreaktionen [22,23] bestimmt. In der Stacked-Target-Methode wird bei Bestrahlungen am Zyklotron ein Targetstack bestrahlt, da dieses Partikel in der Regel nur mit bestimmten fest vorgegebenen Energien beschleunigen kann. Um einen größeren Energiebereich abdecken zu können, wird die Stacked-Target-Methode für die Datenmessung angewendet. Ein Targetstack besteht aus einem Stapel von Metallfolien (Target- und Monitorfolien, Energieabsorberfolien zur gezielten Energieschwächung) mit einer bestimmten Reihenfolge der Folien. Entlang des Targetstacks kommt es ausgehend von dem einfallenden Partikelstrahl sowohl zu einer Schwächung der Partikelenergie, die basierend auf den Arbeiten von [24,25] berechnet werden kann, als auch zu einer Zunahme des Energiefehlers. ^{93m}Mo kann als leicht detektierbares Tracernuklid in Experimenten zur Anpassung des oben genannten $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ -Generators verwendet werden. Die $^{93}\text{Nb}(p,n)^{93m}\text{Mo}$ -Reaktion ist bereits in der Literatur [26-35] beschrieben. Zwischen den veröffentlichten Datensätzen bestehen jedoch erhebliche Abweichungen und Unsicherheiten, weshalb eine Überprüfung der verfügbaren Wirkungsquerschnittsdaten vorgenommen wurde. Neben der Bestimmung der Anregungsfunktion wurde auch die integrale Ausbeute der Reaktion bestimmt, um herauszufinden, ob mit der $^{93}\text{Nb}(p,n)^{93m}\text{Mo}$ -Reaktion genügend ^{93m}Mo -Aktivität für Tracer-Experimente erzeugt werden kann. Die Wirkungsquerschnitte wurden ausgehend von den gemessenen Gammaspektren und auf Basis der allgemeinen Aktivierungsgleichung [20] (Gleichung 1) berechnet und anschließend mit ausgewählten Literaturwerten und theoretisch berechneten Anregungsfunktionen (TALYS und TENDL-2023 [36]) verglichen.

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N = \varphi \cdot N_t \cdot \sigma \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t})$$

Gleichung 1 Allgemeine Aktivierungsgleichung [20]. Anzahl der Produktkerne N , Zeit seit Ende der Bestrahlung t , Zerfallskonstante λ der Produktkerne, Partikelfluss φ , Anzahl der Targetkerne N_t , Wirkungsquerschnitt σ .

In der darauffolgenden zweiten Veröffentlichung wurden die Wirkungsquerschnitte der $^{nat}\text{Zr}(\alpha, x)^{93m/99}\text{Mo}$ -Reaktionen durch Bestrahlung von Zirkoniumfolie mit Alphapartikeln am Zyklotron im Energiebereich bis 30 MeV mittels der Stacked-Target-Methode experimentell untersucht. Die Eingangsenergie der Alphapartikel und der Partikelfluss wurden mithilfe der $^{nat}\text{Cu}(\alpha, x)^{66/67}\text{Ga}$ -Monitorreaktionen [22,23] bestimmt. Die $^{nat}\text{Zr}(\alpha, x)^{93m/99}\text{Mo}$ -Reaktionen liefern sowohl das als Tracer nutzbare ^{93m}Mo als auch ^{99}Mo durch die $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ -Reaktion. Durch das Abtrennen dieser beiden Radionuklide vom Zr-Targetmaterial und das Hinzufügen von ^{nat}Mo kann ^{99}Mo mit niedriger spezifischer Aktivität erhalten werden. Dieses kann die Trennungsexperimente von $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ eingesetzt werden. Die $^{nat}\text{Zr}(\alpha, x)^{93m}\text{Mo}$ -Reaktion [37-41] und die $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ -Reaktion [37,39,40,42-47] sind ebenfalls in der Literatur beschrieben und zeigen Abweichungen zwischen den einzelnen Datensätzen und theoretischen Berechnungen (TALYS und TENDL-2025 [48]), weshalb eine Überprüfung vorgenommen wurde. Für die $^{nat}\text{Zr}(\alpha, x)^{93m}\text{Mo}$ -Reaktion sind nur wenige Messwerte im Bereich des ersten Maximums der Anregungsfunktion (um 20 MeV) in der Literatur bekannt. Die integralen Ausbeuten der $^{nat}\text{Zr}(\alpha, x)^{93m}\text{Mo}$ - und $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ -Reaktion wurden bestimmt, um zu überprüfen, ob genügend hohe Aktivitäten für die schon erwähnten Trennungsexperimente erhalten werden können. Die Wirkungsquerschnitte beider Reaktionen wurden ausgehend von den gemessenen Gammaspektren und der Aktivierungsgleichung berechnet, die integrale Ausbeute bestimmt und anschließend mit Literaturwerten verglichen.

Im dritten Manuskript wurden erstmals die Wirkungsquerschnitte der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ -Reaktion durch Bestrahlung einer ^{99}Tc -Abscheidung auf Goldfolie mit $^7\text{Li}^{3+}$ -Ionen im Energiebereich von 20 bis 34 MeV experimentell bestimmt. Die Bestrahlungen fanden am 10 MV FN-Tandem-Beschleuniger des Instituts für Kernphysik der Universität zu Köln statt, an welchem die Partikelenergie der $^7\text{Li}^{3+}$ -Ionen für die jeweilige Bestrahlung eingestellt werden konnte. Somit war der Einsatz eines Targetstacks mit Folien zur Energieschwächung nicht nötig. Die Anzahl der erzeugten ^{103}Pd -Kerne wurde anhand der von angeregten ^{103}Pd -Kernen emittierten prompten Gammastrahlung bestimmt und daraus die entsprechenden Wirkungsquerschnitte berechnet. Die $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ -Reaktion stellt eine neue Möglichkeit dar, das Radionuklid ^{103}Pd , dessen Konversionselektronen und Auger-Elektronen in der Nuklearmedizin zur Bekämpfung von Tumoren eingesetzt werden, herzustellen. Das Targetmaterial ^{99}Tc fällt in großen Mengen in Kernreaktoren bei der Spaltung von ^{235}U an. Zudem fällt es als Zerfallsprodukt von $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ in medizinisch genutzten Generatoren an. Aufgrund seiner schwachen Betazerfallsenergie, ist beim Umgang mit reinem ^{99}Tc keine starke Abschirmung der Strahlung notwendig. Ein wesentlicher Vorteil bei der Nutzung der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ -Reaktion im Vergleich zu den etablierten Methoden ($^{\text{nat}}\text{Ag}(\text{p},\text{x})^{103}\text{Pd}$ - und $^{103}\text{Rh}(\text{p},\text{n})^{103}\text{Pd}$ -Reaktion) ist die chemisch einfachere Abtrennung von ^{103}Pd vom Tc-Targetmaterial als von Ag- oder Rh-Targetmaterial über einen Ionenaustauscher. Ein Nachteil der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ -Reaktion ist die eingeschränkte Verfügbarkeit von Beschleunigern, die einen $^7\text{Li}^{3+}$ -Ionenstrahl mit einem hohen Strahlstrom bereitstellen können.

Im vierten Teil der experimentellen Arbeit sollte, ausgehend von der oben beschriebenen $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion, die neben $^{93\text{m}}\text{Mo}$ auch den Grundzustand $^{93\text{g}}\text{Mo}$ liefert, die Wirkungsquerschnitte der $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{g}}\text{Mo}$ -Reaktion bestimmt werden. Aufgrund der besonderen Zerfallseigenschaften ist es nicht möglich, die $^{93\text{g}}\text{Mo}$ -Aktivität mittels Gammaspektroskopie zu bestimmen. Eine alternative Methode bietet die LSC-Messung (liquid scintillation counting). Diese setzt aber voraus, dass Niob und

Molybdän vollständig voneinander getrennt sein müssen, um Interferenzen zu vermeiden [10-12]. Ein chemischer Trennungsgang wurde auf Grundlage der Arbeiten von [10,11] unter Verwendung von ^{90}Nb als Tracernuklid entwickelt. Wie sich später jedoch durch Berechnungen herausstellte, ist es nicht möglich durch die Bestrahlung am Zyklotron in einer angemessenen Zeitspanne genügend $^{93\text{g}}\text{Mo}$ -Aktivität zu erzeugen, um die Wirkungsquerschnitte experimentell bestimmen zu können. Dennoch konnte der Trennungsgang dazu verwendet werden um eine $^{93\text{g}}\text{Mo}$ -Lösung herzustellen, die als Standard in der AMS (accelerator mass spectrometry) eingesetzt werden soll.

2 Veröffentlichungen und Manuskripte

Die vorliegende Arbeit beruht auf drei Veröffentlichungen bzw. Manuskripten, die im Nachfolgenden beschrieben sind. Der Verfasser ist der Erstautor dieser Arbeiten.

Veröffentlichungen und Manuskripte:

- 1) **Andreas Dragoun**, Ingo Spahn, Mazhar Hussain, Erik Strub, Bernd Neumaier, Johannes Ermert Cross-section measurements of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction up to 17 MeV. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **2025**, 334, 5149-5154. DOI: 10.1007/s10967-025-10178-z
- 2) **Andreas Dragoun**, Lucas Mues, Ingo Spahn, Erik Strub, Bernd Neumaier, Johannes Ermert Cross-section measurements of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,\text{x})^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ reaction up to 30 MeV. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **2026**. DOI: 10.1007/s10967-026-10929-6
- 3) **Andreas Dragoun**, Michael Weinert, Anna Bohn, Bernd Neumaier, Johannes Ermert, Erik Strub First production of the medical radionuclide ^{103}Pd from ^{99}Tc and determination of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ nuclear reaction cross-sections between 20 and 34 MeV. Manuskript eingereicht in *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **2026**.

2.1 Veröffentlichung 1: Cross-section measurements of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction up to 17 MeV

2.1.1 Angaben zur Veröffentlichung

Andreas Dragoun, Ingo Spahn, Mazhar Hussain, Erik Strub, Bernd Neumaier, Johannes Ermert Cross-section measurements of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction up to 17 MeV. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **2025**, 334, 5149-5154.

DOI: 10.1007/s10967-025-10178-z

Diese Publikation wurde im Jahr 2025 Open Access mit einer Creative Commons Attribution 4.0 International License im Peer-Review Journal *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* veröffentlicht. In dem hier eingebundenen Artikel wurden kleine Änderungen u.a. in Hinblick auf Rechtschreibung und Grammatik vorgenommen, sowie das Layout von Text, Abbildungen und Tabellen angepasst.

2.1.2 Zusammenfassung der Veröffentlichung

In der folgenden Veröffentlichung wurden die Wirkungsquerschnitte der $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion bis zu einer Protonenenergie von 17 MeV experimentell bestimmt. Das Radionuklid $^{93\text{m}}\text{Mo}$ kann als Tracernuklid in Experimenten zur Trennung von ^{99}Mo mit niedriger spezifischer Aktivität und $^{99\text{m}}\text{Tc}$ verwendet werden. Die Bestrahlungen wurden am JSW BC 1710 Zyklotron am Institut für Neurowissenschaften und Medizin – Nuklearchemie (INM-5) am Forschungszentrum Jülich durchgeführt. Zur Bestimmung der Protonenenergie und des Protonenflusses, wurden die $^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})^{62/63}\text{Zn}$ -Monitorreaktionen verwendet. Das Reaktionsprodukt $^{93\text{m}}\text{Mo}$ wurde mittels Gammaspektroskopie identifiziert und dessen Aktivität bestimmt. Die Wirkungsquerschnitte wurden mithilfe der Aktivierungsgleichung berechnet. Die Anregungsfunktion dieser Reaktion ist bereits in der Literatur bekannt. Da sich jedoch Abweichungen zwischen den verschiedenen Literaturwerten zeigen, wurde eine Überprüfung vorgenommen. Die experimentellen Ergebnisse wurden mit den Literaturwerten sowie mit theoretischen TALYS-Berechnungen und TENDL-Daten verglichen. Durch die Berechnung der integralen Ausbeute konnte gezeigt werden, dass durch die $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion eine ausreichend hohe $^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Aktivität für Tracerexperimente erzeugt werden kann.

2.1.3 Eigene Beiträge zur Veröffentlichung

Die in dieser Veröffentlichung beschriebenen Experimente wurden selbstständig durchgeführt. Dies umfasste die Anfertigung der Targets und deren Anbringung am Bestrahlungsrohr des Zyklotrons. Die Bedienung des Zyklotrons erfolgte durch die Zyklotronoperateure. Die bestrahlten Targets wurden selbstständig demontiert und die gammaspektroskopischen Messungen durchgeführt. Die Auswertungen der Gammaspektren und die Berechnungen der Wirkungsquerschnitte wurden selbstständig durchgeführt. Die theoretischen TALYS-Berechnungen und ein Entwurf des zugehörigen Textbausteins für das Manuskript wurden von M. Hussain beigesteuert. Das Manuskript und die darin enthaltenen Abbildungen wurden ebenfalls selbstständig angefertigt.

2.1.4 Manuskript

Cross-section measurements of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction up to 17 MeV

Andreas Dragoun^{1,2}, Ingo Spahn², Mazhar Hussain^{2,3}, Erik Strub¹,
Bernd Neumaier^{1,2,4*}, Johannes Ermert^{1,2}

¹ Division of Nuclear Chemistry, Department of Chemistry and Biochemistry, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, University of Cologne, 50674 Cologne, Germany

² Institute of Neuroscience and Medicine – Nuclear Chemistry (INM-5), Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich, Germany

³ Department of Physics, Government College University Lahore (GCUL), Lahore 5400, Pakistan

⁴ Institute of Radiochemistry and Experimental Molecular Imaging, Faculty of Medicine and University Hospital Cologne, University of Cologne, 50937 Cologne, Germany

* Corresponding author: b.neumaier@fz-juelich.de

Received: 10 April 2025 / Accepted: 9 May 2025 / Published online: 31 May 2025

© The Author(s) 2025

Abstract

The nuclear reaction cross-sections of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ process were measured in three experiments up to 17 MeV proton energy by using the stacked target foil technique. The target stacks were irradiated at the cyclotron JSW BC 1710 at the Forschungszentrum Jülich, INM-5. The $^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})^{62/63}\text{Zn}$ reactions were used as monitor reactions to determine the proton particle flux and the incident proton energy. The experimental results were compared with literature data and with theoretical nuclear model calculations based on the TALYS-1.96 code and the data from TENDL-2023. Furthermore, it could be shown that the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction delivers sufficient amounts of activity for the later application of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ as a tracer to optimize the radiochemical separation of low specific activity ^{99}Mo and $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Keywords

Cross-section · Excitation function · Cyclotron irradiation · Targetry ·
Molybdenum-93m

Introduction

Nuclear data are of significant importance across a wide range of research areas and applications, particularly in the context of evaluating the validity of nuclear models and the production of medical radionuclides and other tracer nuclides. ^{99}Mo , the parent of the world's most widely used medical radionuclide, $^{99\text{m}}\text{Tc}$, is almost exclusively produced in nuclear research reactors by the fission of highly enriched ^{235}U , which poses a threat of proliferation. In addition, there have been repeated supply shortages of ^{99}Mo

in the past due to maintenance work on the aging nuclear reactors and unexpected reactor shutdowns. To address these problems, among others, the joint project *⁹⁹MoBest* was initiated by the German Federal Ministry of Research, Technology and Space (BMFTR) to develop alternative production routes for ⁹⁹Mo using accelerator-based technologies to avoid the use of fissile material. However, these alternative production methods will produce ⁹⁹Mo with low specific activity, making it necessary to adapt the established ⁹⁹Mo/^{99m}Tc generator system for the use of ⁹⁹Mo with low specific activity. Therefore, ^{93m}Mo was selected as a tracer to optimize the radiochemical separation of ⁹⁹Mo and ^{99m}Tc. The radionuclide ⁹³Mo has a ground state ^{93g}Mo (half-life of $4.0 \cdot 10^3$ y; spin 5/2+), and a metastable isomer ^{93m}Mo (half-life of 6.85 h; spin 21/2+). The excited state decays almost exclusively (99.8832 %) via isomeric transition to the ground state and by beta plus decay (0.1169 %) to ⁹³Nb [1]. During the decay, three high-intensity gamma lines (263.1, 684.7 and 1477.2 keV) are emitted, which are suitable for identification and activity determination. To optimize the cyclotron production of ^{93m}Mo, it is essential to know the exact excitation function. Furthermore, at higher energies, the ⁹³Nb(p,4n)⁹⁰Mo reaction can be used as a proton beam monitor [2]. The excitation function of the ⁹³Nb(p,n)^{93m}Mo nuclear reaction has been reported in the literature [3-9]. However, these data sets show inconsistencies, which require a critical review.

In this work, we aimed to comprehensively evaluate the excitation function up to 17 MeV, using experimental data and nuclear model calculations performed with the TALYS-1.96 code. The ^{nat}Cu(p,x)^{62/63}Zn monitor reactions were used to determine the proton energy and proton flux. The nuclear reaction cross-sections were calculated by using the activation equation.

Experimental

Target preparation

For the activation experiments at the cyclotron, the stacked-foil technique [10] was used. Each target consisted of three distinct types of metal foils: niobium target foils (99.9 % purity, 0.0075 mm thickness, Thermo Scientific), copper monitor foils (99.9 % purity, 0.01 mm thickness, Goodfellow), and aluminium energy degrader foils (99.0 % and 99.999 % purity, 0.020 mm and 0.050 mm thickness, Goodfellow). The foils were cut into 13 mm diameter discs, weighed using an analytical balance (accuracy of 0.0001 g) and stacked in the screw-capped target holder, which was made of copper [11].

Irradiation and beam monitoring

The sequence of the foils in each target stack was based on calculations of the energy loss along the stack. These calculations were carried out using the Excel-based program *Stack*, written by Forschungszentrum Jülich based on the formalism of Bethe [12] and the tables of Williamson et al. [13]. A copper monitor foil was placed on the top of each stack to determine the incident proton energy and proton particle flux, employing the $^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})^{62/63}\text{Zn}$ monitor reactions as recommended by the IAEA [14] and Hermanne et al. [15], and the ratio of ^{62}Zn and ^{63}Zn as described by Piel et al. [16]. The proton irradiations were conducted at the JSW Baby Cyclotron BC 1710 at the INM-5. The target stacks were irradiated for 30 min with an incident proton beam energy of 17 MeV and a beam current of 1 μA .

Measurement of radioactivity

Following the irradiations, the target stacks were disassembled and the activity of the niobium and copper foils was determined by gamma-ray spectrometry using a high-resolution HPGe gamma-ray detector (Ortec, GEM-20190). The measured count rates were converted into decay rates, considering the corresponding γ -ray emission probability and the efficiency of the detector. The efficiency of the HPGe γ -ray detector was determined with standard gamma-ray point sources (^{241}Am , ^{133}Ba , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu , and ^{54}Mn from Eckert & Ziegler). The detector efficiency calibration was performed for different distances between the sample and the detector. For each measurement, a sufficiently large distance was chosen to minimize the dead time ($< 10\%$) and reduce the coincident summing effect. To ensure adequate statistical uncertainties of $\cong 1\%$ the counting times were adjusted accordingly. The decay data used for identifying and measuring the activity for the reaction products were obtained from the Live Chart of Nuclides [1] of the IAEA and are given in Table 1. A typical γ -ray spectrum of a niobium foil irradiated with 12.8 MeV protons is shown in Fig. 1. The measured γ -ray spectra were analyzed using GammaVision software (version 8.10.02, Advanced Measurement Technology Inc.), which can determine the energy and number of counts of the photopeaks.

Table 1 Decay data [1] and production routes of the reaction products

Nuclide	Production route	Half-life	Decay mode (%)	Energy of gamma emission (keV)	Intensity of gamma emission (%)
$^{93\text{m}}\text{Mo}$	$^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})$	6.85 h	IT (99.88);	263.05	57.4
			$\text{EC} + \beta^+$	684.69	99.9
			(0.12)	1477.14	99.1
^{62}Zn	$^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})$	9.193 h	$\text{EC} + \beta^+$	548.35	15.3
			(100)	596.56	26.0
^{63}Zn	$^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})$	38.47 min	$\text{EC} + \beta^+$	669.64	8.2
			(100)	962.06	6.5

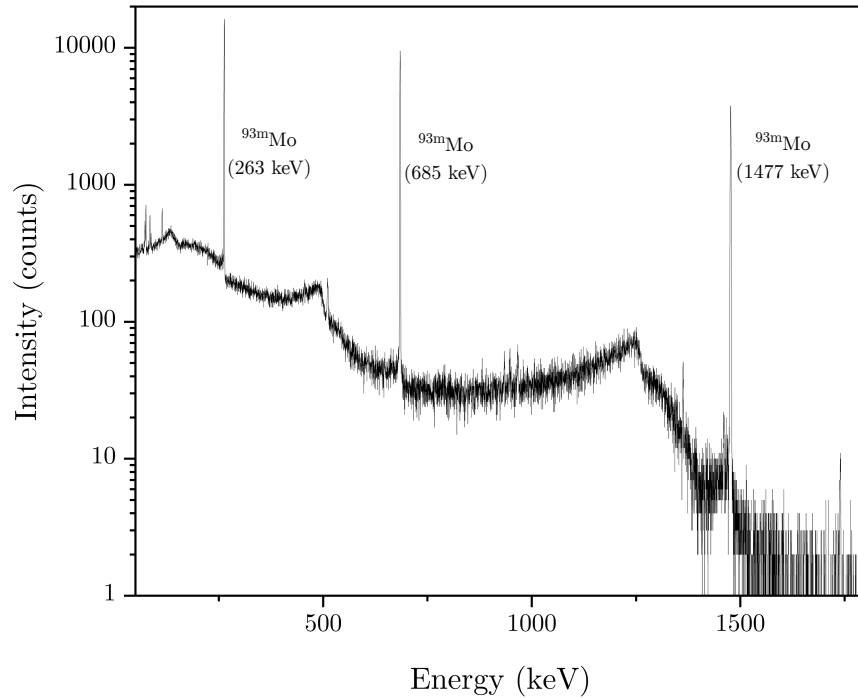


Fig. 1 Typical γ -ray spectrum of a niobium foil irradiated with 12.8 MeV protons measured five hours after the end of bombardment, showing the three most intense gamma-ray signals of $^{93\text{m}}\text{Mo}$. By-products could not be observed

Calculation of cross-sections and uncertainties

The cross-section values were calculated using the well-known activation equation. The total uncertainty in each cross-section value was obtained by error propagation, considering the following uncertainties: mass of the metal foils (1 %), peak area (statistical uncertainty; 0.8 to 3.4 %), peak efficiency (uncertainty of the fitted efficiency curve; 1.3 to 1.6 %), decay data (1 %), and calculated proton flux (8 %). The total uncertainty in each measured cross-section value ranged from 8 to 8.7 %.

Theoretical calculations

Different codes are available for the simulation of nuclear cross-sections [15]. The TALYS code has been developed for the calculation of reaction cross-sections from 1 keV to 200 MeV [17,18]. TALYS-1.96 is the most recent version for the validation and evaluation of experimental data. The input parameters are normally obtained from the RIPL-3 library of the IAEA [19]. The ECIS code, incorporated in TALYS implements the optical model and direct reaction mechanisms for the calculation. The continuum levels are calculated by the back-shifted Fermi gas model developed in the TALYS-1.96 code. The modified optical model potentials (OMPs) from the compilation of Koning and Delaroche were chosen for protons in all competing nuclear reactions [20]. The results obtained using general and modified parameters led to the generation of reaction cross-sections of the $^{93}\text{Nb}(p,n)$ -reaction for the formation of $^{93\text{m}}\text{Mo}$. The calculated results are shown in Fig. 2 together with TENDL-2023 data [21] for comparison.

Results and discussion

Cross-sections

The experimental cross-sections and their associated uncertainties derived from the three irradiations presented in this study are listed in Table 2. These are illustrated alongside theoretical calculations obtained from TALYS and data from TENDL-2023 [21] in Fig. 2.

As illustrated in Fig. 2, cross-section values of all three irradiations are consistent within the uncertainties. The cross-sections of irradiation 1 seem to be somewhat shifted to lower values yet remain within the range of measurement uncertainties. The experimental cross-sections of the present study and recent literature data from Avila-Rodriguez et al. [3], Ditrói et al. [4], Kim et al. [5], Lawriniang et al. [6], Parashari et al. [7], Rizvi et al. [8] and Levkovskij [9] are compared in Fig. 3. It should be noted that some older literature values, including those from Blaser et al. [22], Forsthoff et al. [23], and James [24], were not considered in this study and the focus was on comparison with more recent literature. The measured cross-sections follow the general trend of the literature curves and are in good agreement with the data reported by Avila-Rodriguez et al. and Ditrói et al. In contrast, the data of Ditrói et al. are somewhat scattered. The data presented by Lawriniang et al. and Kim et al. tend to underestimate the cross-section in certain regions of the excitation function. In particular, the three measured values in the range of the maximum of the excitation function of Kim et al. are significantly lower than our data and the other literature values. Furthermore, the cross-sections from Rizvi et al. are shifted to higher values in the lower energy region. The cross-sections from Levkovskij [9] are generally shifted to lower energies compared to the other literature values and our experimental data. The theoretical values derived from the TALYS calculations are in accordance with the experimental cross-sections of our study. However, above 13 MeV, a slight shift towards higher energies is observed

for the data presented in this work. The theoretical TALYS calculations show better agreement with our experimental data values than the TENDL-2023 data. The cross-sections from TENDL are much lower compared to most of the literature values, except the data from Kim et al. Compared to many other (p,n)-reactions in this mass region, the cross-section value for the $^{93}\text{Nb}(p,n)^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction is rather small [25]. There are possibly two reasons: (1) cross-sections for metastable states are generally lower than the total (p,n) cross-section; (2) the very high-spin isomer (spin 21/2+) is not favourably populated at low projectile energies used in this work [26,27].

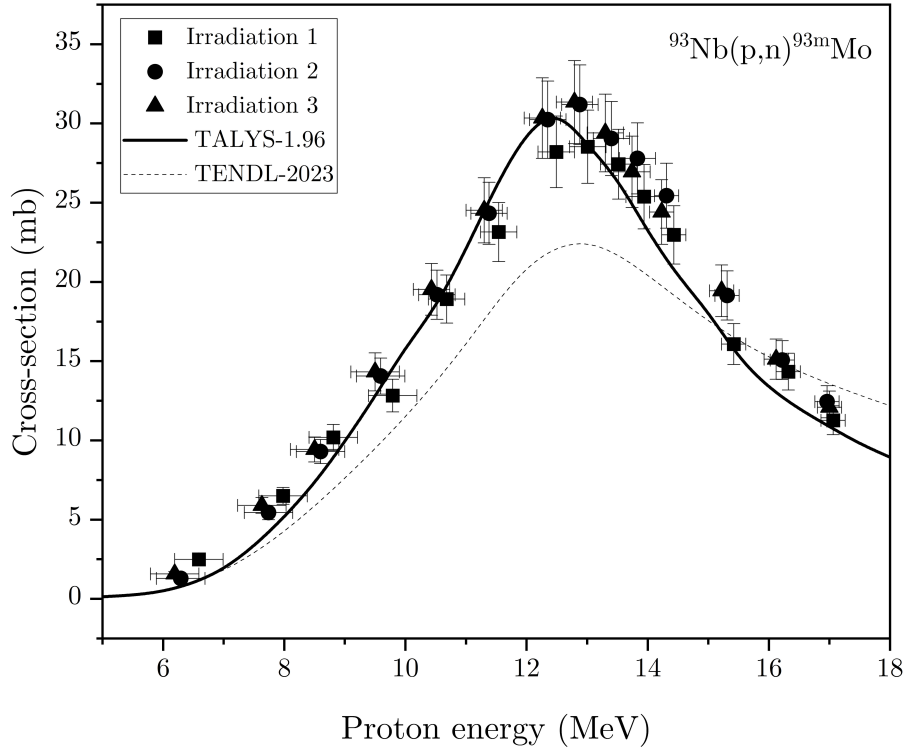


Fig. 2 Experimental cross-sections of the $^{93}\text{Nb}(p,n)^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction of the present work compared with theoretical nuclear model calculations by TALYS-1.96 and the TENDL-2023 data [21]

Table 2 Experimental cross-sections of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction

Irradiation 1		Irradiation 2		Irradiation 3	
Proton energy (MeV)	Cross- section (mb)	Proton energy (MeV)	Cross- section (mb)	Proton energy (MeV)	Cross- section (mb)
17.1 ± 0.2	11.3 ± 1.0	17.0 ± 0.2	12.4 ± 1.0	17.0 ± 0.2	12.1 ± 1.0
16.3 ± 0.2	14.3 ± 1.2	16.2 ± 0.2	15.1 ± 1.2	16.1 ± 0.2	15.1 ± 1.3
15.4 ± 0.2	16.1 ± 1.3	15.3 ± 0.2	19.2 ± 1.6	15.2 ± 0.2	19.4 ± 1.6
14.4 ± 0.2	23.0 ± 1.8	14.3 ± 0.2	25.4 ± 2.1	14.2 ± 0.2	24.4 ± 2.0
13.9 ± 0.3	25.4 ± 2.0	13.8 ± 0.3	27.8 ± 2.2	13.7 ± 0.3	27.0 ± 2.3
13.5 ± 0.3	27.4 ± 2.2	13.4 ± 0.3	29.1 ± 2.3	13.3 ± 0.3	29.4 ± 2.5
13.0 ± 0.3	28.5 ± 2.3	12.9 ± 0.3	31.2 ± 2.5	12.8 ± 0.3	31.4 ± 2.6
12.5 ± 0.3	28.2 ± 2.3	12.4 ± 0.3	30.2 ± 2.4	12.3 ± 0.3	30.4 ± 2.5
11.5 ± 0.3	23.2 ± 1.9	11.4 ± 0.3	24.3 ± 2.0	11.3 ± 0.3	24.5 ± 2.1
10.7 ± 0.3	18.9 ± 1.5	10.5 ± 0.3	19.2 ± 1.6	10.4 ± 0.3	19.5 ± 1.6
9.8 ± 0.4	12.8 ± 1.0	9.6 ± 0.4	14.1 ± 1.1	9.5 ± 0.4	14.3 ± 1.2
8.8 ± 0.4	10.2 ± 0.8	8.6 ± 0.4	9.3 ± 0.8	8.5 ± 0.4	9.4 ± 0.8
8.0 ± 0.4	6.5 ± 0.5	7.7 ± 0.4	5.5 ± 0.5	7.6 ± 0.4	5.9 ± 0.5
6.6 ± 0.4	2.5 ± 0.2	6.3 ± 0.4	1.3 ± 0.1	6.2 ± 0.4	1.6 ± 0.1

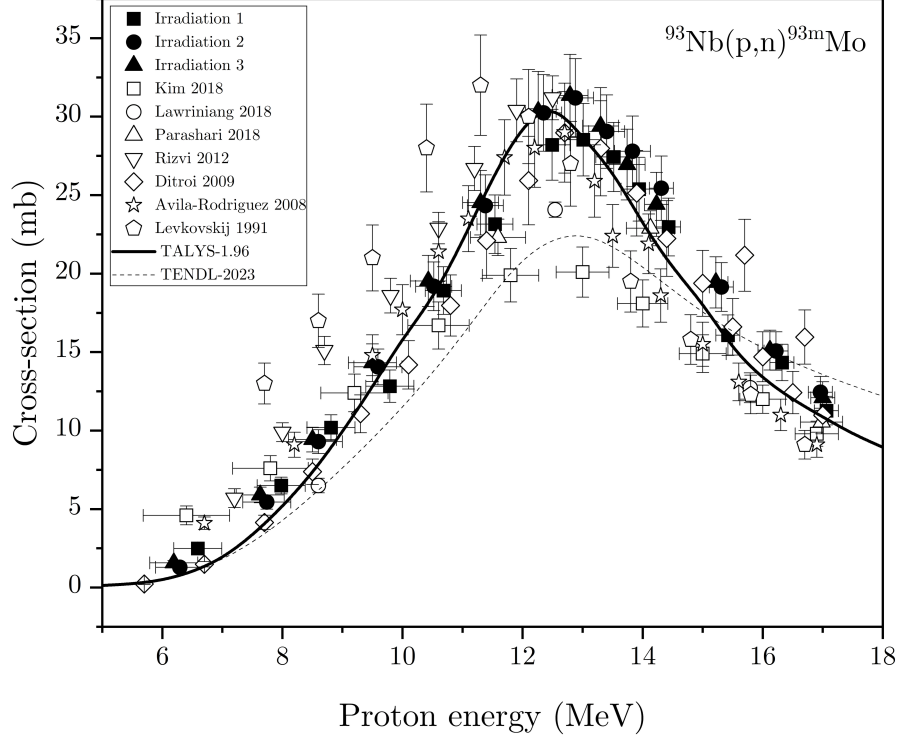


Fig. 3 Comparison of experimental cross-sections with literature data of the $^{93}\text{Nb}(p,n)^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction and theoretical calculation obtained from TALYS-1.96 and TENDL-2023 [21]

Integral yields

The integral yields for the production of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ were calculated based on the measured cross-sections corresponding to an irradiation period of 1 h and a beam current of 1 μA and are given in Fig. 4. By irradiating ^{93}Nb for one hour with a beam current of 1 μA in the energy region around the maximum of the excitation function (between 11 and 13 MeV), a $^{93\text{m}}\text{Mo}$ activity of 12.7 MBq can be obtained. This amount of activity is sufficient for the planned use of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ as a tracer to optimize the radiochemical separation of low specific activity ^{99}Mo and $^{99\text{m}}\text{Tc}$. In the literature, some single values are known for certain energies, e.g. [28-31], but no complete yield curve. Sadeghi et al. [28] report a yield of 19 MBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{h}$ at an energy of 12.5 MeV, which is close to our

value reported in Fig. 4. The other yield data from Abe et al. [29] (269 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}\cdot\text{h}$, respectively 10 MBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{h}$; 15.5 MeV), Isshiki et al. [30] (6400 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}\cdot\text{h}$, respectively 237 MBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{h}$; 10.4 MeV) and Nickles [31] (1.7 mCi/ $\mu\text{A}\cdot\text{h}$, respectively 63 MBq/ μA ; 11 MeV) show large deviations from our experimental data.

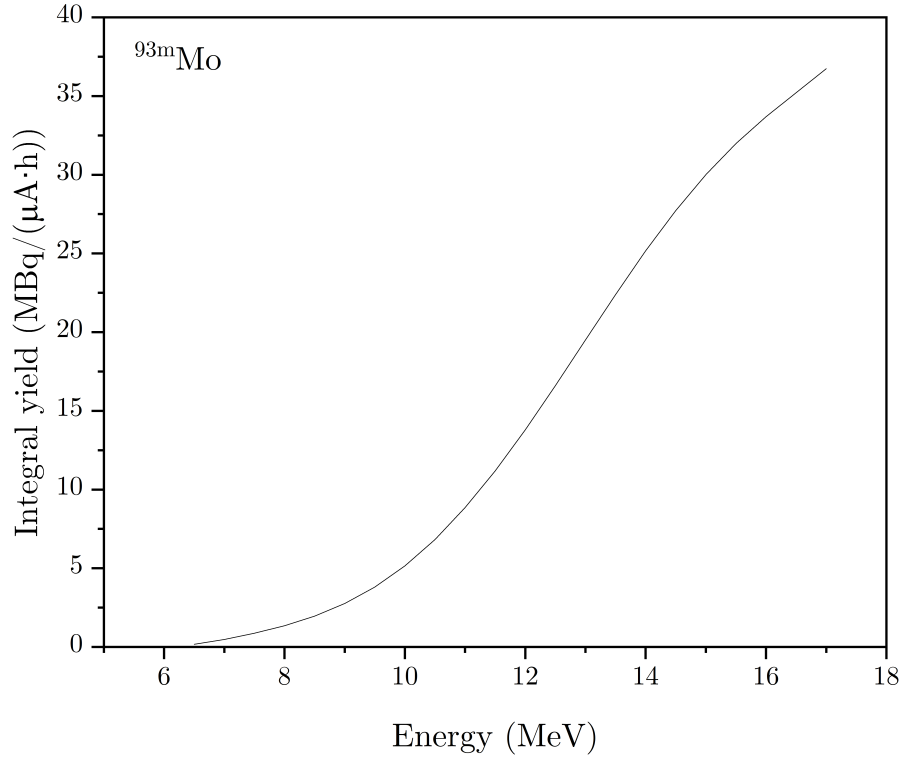


Fig. 4 Integral yields for the production of $^{93\text{m}}\text{Mo}$

Conclusions

The excitation functions of the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction was measured three times up to energies of 17 MeV using the stacked foil technique with an overall uncertainty of 8 to 8.7 %. The experimental cross-sections were compared with literature data and theoretical values obtained from calculations conducted with TALYS-1.96. It was observed that the excitation functions from the present work were in good agreement with the theoretical TALYS code calculations and with most of the literature values, except for the TENDL-2023 data. It was also shown that the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction provides sufficient activity for the future application of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ as a tracer in radiochemical separations of low activity ^{99}Mo and $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Acknowledgements The authors would like to express their gratitude to Stefan Spelleberg, Marina Birr and Ingo Montag for conducting the cyclotron irradiations at the INM-5. Furthermore, the authors would like to acknowledge Syed M. Qaim for his contributions to the project through discussions and guidance.

Author contributions A. Dragoun: Conceptualization, investigation, data curation, visualization, writing – original draft, writing – review & editing. I. Spahn: Investigation, validation. M. Hussain: Theoretical calculations. E. Strub: Validation. B. Neumaier: Supervision, writing – review & editing. J. Ermert: Supervision, conceptualization.

Funding Open Access funding enabled and organized by Project DEAL. This work is part of the ^{99}Mo Best collaboration and received funding by the German Federal Ministry of Research, Technology and Space (BMFTR) under grant No. 02NUK080A.

Declarations

Conflict of interests The authors declare they have no known competing financial interests that could have appeared to influence the work reported in this paper. The author B. Neumaier is Associate Editor of the *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*.

Open Access This article is licensed under the Creative Commons Attribution 4.0 International Licence, which permits use, sharing, adaption, distribution and reproduction in any medium or format, as long as you give appropriate credit to the original author(s) and the source, provide a link to the Creative Commons licence, and indicate if changes were made. The images of other third party material in this article are included in the article's Creative Commons licence, unless indicated otherwise in a credit line on the material. If material is not included in the article's Creative Commons licence and your intended use is not permitted by statutory regulation or exceeds the permitted use, you will need to obtain permission directly from the copyright holder. To review a copy of the licence, visit <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>.

References

1. IAEA Live Chart of Nuclides,
<https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>
2. Tárkányi F, Hermanne A, Ignatyuk AV, Ditrói F, Takács S, Capote-Noy R (2024) Extension of evaluated cross section database for charged particle monitor reactions. *J Radioanal Nucl Chem* 333:4243-4331
3. Avila-Rodriguez MA, Wilson JS, Schueller MJ, McQuarrie SA (2008) Measurement of the activation cross section for the (p,xn) reactions in niobium with potential applications as monitor reactions. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 266:3353-3358
4. Ditrói F, Hermanne A, Corniani E, Takács S, Tárkányi F, Csikai J, Shubin YuN (2009) Investigation of proton induced reactions on niobium at low and medium energies. *Nucl Instrum and Methods Phys Res B* 267:3364-3374
5. Kim K, Kim G, Shahid M, Zaman M, Yang S-C, Uddin MdS, Naik H (2018) Excitation functions of $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{x})$ reactions from threshold to 42.4 MeV. *J Radioanal Nucl Chem* 317:1021-1031
6. Lawriniang B, Ghosh R, Badwar S, Vansola V, Santhi Sheela Y, Suryanarayana SV, Naik H, Naik YP, Jyrwa B (2018) Measurement of cross-sections for the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ and $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{pn})^{92\text{m}}\text{Nb}$ reactions up to ~ 20 MeV energy. *Nucl Phys A* 973:79-88
7. Parashari S, Mukherjee S, Nayak BK, Makwana R, Suryanarayana SV, Naik H, Sharma SC (2018) Excitation functions of the $\text{p} + ^{93}\text{Nb}$ reaction in the energy range 10-22 MeV. *Nucl Phys A* 978:160-172
8. Rizvi IA, Kumar K, Ahmad T, Agarwal A, Chaubey AK (2012) Energy dependence of pre-equilibrium emission for the (p,xn) reactions in niobium. *Indian J Phys* 86(10):913-918

9. Levkovskij VN (1991) Levkovskij, Act. Cs. By Protons and Alphas, Moscow, USSR
10. Weinreich R, Schult O, Stöcklin G (1974) Production of ^{123}I via the $^{127}\text{I}(\text{d},6\text{n})^{123}\text{Xe}(\beta^+, \text{EC})^{123}\text{I}$ process. Int J Appl Radiat Isot 25:535-543
11. Spellerberg S, Scholten B, Spahn I, Bolten W, Holzgreve M, Coenen HH, Qaim SM (2015) Target development for diversified irradiations at a medical cyclotron. Appl Radiat Isot 104:106-112
12. Bethe HA (1940) A continuum theory of the compound nucleus. Phys Rev 57:1125-1133
13. Williamson CF, Boujot J-P, Picard J (1966) Tables of range and stopping power of chemical elements for charged particles of energy 0.05 to 500 MeV, Rapport CEA-R 3042
14. IAEA Monitor reactions,
https://www-nds.iaea.org/medical/monitor_reactions.html
15. Hermanne A, Ignatyuk AV, Capote R, Carlson BV, Engle JW, Kellert MA, Kibédi T, Kim G, Kondev FG, Hussain M, Lebeda O, Luca A, Nagai Y, Naik H, Nicholas AL, Nortier FM, Suryanarayana SV, Takács S, Tárkányi FT, Verpelli M (2018) Reference cross sections for charged-particle monitor reactions. Nucl Data Sheets 148:338-382
16. Piel H, Qaim SM, Stöcklin G (1992) Excitation functions of (p,xn)-reactions on $^{\text{nat}}\text{Ni}$ and highly enriched ^{62}Ni : possibility of production of medically important radioisotope ^{62}Cu at a small cyclotron. Radiochim Acta 57:1-5
17. Koning AJ, Hilaire S, Goriely S (2023) TALYS: Modeling of nuclear reactions. Eur Phys J A 59:131
18. TENDL: TALYS global library, available at: TENDL-2021 nuclear data library (psi.ch)

19. Capote R, Herman M, Oblozinsky P, Young PG, Goriely S, Belgya T, Ignatyuk AV, Koning AJ, Hilaire S, Plujko VA, Avrigeanu M, Bersillon O, Chadwick MB, Fukahori T, Ge Z, Han Y, Kaila S, Kopecky J, Maslov VM, Reffo G, Sin M, Soukhovitskii E.Sh., Talou P (2009) RIPL-3, reference input parameter library for calculation of nuclear reactions and nuclear data evaluations. Nucl Data Sheets 110:3107-3214
20. Koning AJ, Delaroche JP (2003) Local and global nucleon optical models from 1 keV to 200 MeV. Nucl Phys A 713:231-310
21. Koning AJ, Rochmann D, Sublet J, Dzysiuk N, Fleming M, Van der Marck S (2019) Complete nuclear data library for innovative nuclear science and technology. Nucl Data Sheets 155:1-55
22. Blaser J-P, Boehm F, Marmier P, Peaslee DC (1951) Fonctions d'excitation de la reaction (p,n). Helv Phys Acta 24(1)
23. Forsthoff C, Gockermann R, Naumann R (1951) Formation and decay of $\text{Mo}^{93\text{m}}$. Phys Rev 90:1004-1005
24. James RA (1954) Excitation functions of proton-induced reactions of Nb^{93} . Phys Rev 93(2):288-290
25. Qaim SM, Mushtaq A (1988) Isomeric cross-section ratio for the formation of $^{73\text{m,g}}\text{Se}$ in various nuclear processes. Phys Rev C 38(2):645-650
26. Kastleiner S, Shubin YuN, Nortier FM, Van der Walt TN, Qaim SM (2004) Experimental studies and nuclear model calculations on (p,xn) and (p,pxn) reactions on ^{85}Rb from their thresholds up to 100 MeV. Radiochim Acta 92:449-454
27. Uddin MS, Sudár S, Basunia MS, Spahn I, Voyles AS, Hermanne A, Bernstein LA, Neumaier B, Qaim SM (2024) Cross sections for the formation of $^{84\text{m,g}}\text{Rb}$, ^{83}Rb and $^{82\text{m}}\text{Rb}$ in $^{86}\text{Sr}(\text{d},\text{x})$ reactions up to deuteron energies of 49 MeV: Competition between α -particle and multinucleon emission processes. Phys Rev C 110:064608

28. Sadeghi M, Enferadi M, Nadi H, Tenreiro C (2010) A novel method for the cyclotron production no-carrier-added ^{93m}Mo for nuclear medicine. *J Radioanal Nucl Chem* 286:141-144
29. Abe K, Iizuka A, Hasegawa A, Morozumi S (1984) Induced radioactivity of component materials by 16-MeV protons and 30-MeV alpha particles. *J Nucl Mater* 122&123:972-976
30. Isshiki M, Fukuda Y, Igaki K (1984) Proton activation analysis of trace impurities in purified cobalt. *Radioanal Nucl Chem* 82(1):135-142
31. Nickles RJ (1991) A shotgun approach to the chart of the nuclides. Radiotracer production with an 11 MeV proton cyclotron. *Acta Radiol Suppl* 376:69-71

Publisher's Note Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

2.2 Veröffentlichung 2: Cross-section measurements of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x)^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ reactions up to 30 MeV

2.2.1 Angaben zur Veröffentlichung

Andreas Dragoun, Lucas Mues, Ingo Spahn, Erik Strub, Bernd Neumaier, Johannes Ermert Cross-section measurements of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x)^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ reactions up to 30 MeV. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **2026**.

DOI: 10.1007/s10967-026-10929-6

Diese Publikation wurde im Jahr 2026 Open Access mit einer Creative Commons Attribution 4.0 International License im Peer-Review Journal *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* veröffentlicht. In dem hier eingebundenen Artikel wurden kleine Änderungen u.a. in Hinblick auf Rechtschreibung und Grammatik vorgenommen, sowie das Layout von Text, Abbildungen und Tabellen angepasst.

2.2.2 Zusammenfassung der Veröffentlichung

In der folgenden Veröffentlichung wurden die Wirkungsquerschnitte der ${}^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x){}^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ -Reaktionen bis zu einer Energie der Alphateilchen von 30 MeV experimentell bestimmt. Die durch Alphapartikel induzierte Reaktion mit Zirkonium liefert sowohl ${}^{93\text{m}}\text{Mo}$ über die ${}^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x){}^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion als auch ${}^{99}\text{Mo}$ über die ${}^{96}\text{Zr}(\alpha, n){}^{99}\text{Mo}$ -Reaktion. Das Radionuklid ${}^{93\text{m}}\text{Mo}$ kann als Tracernuklid in Experimenten zur Trennung von ${}^{99}\text{Mo}$ mit niedriger spezifischer Aktivität und ${}^{99\text{m}}\text{Tc}$ verwendet werden. ${}^{99}\text{Mo}$ mit niedriger spezifischer Aktivität kann aus der ${}^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x){}^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ -Reaktionen erhalten werden, indem ${}^{99}\text{Mo}$ nach dem Zerfall des ${}^{93\text{m}}\text{Mo}$ vom Targetmaterial abgetrennt wird und mit ${}^{\text{nat}}\text{Mo}$ versetzt wird. Die Bestrahlungen wurden am IBA Cyclone 30 XP – Zyklotron am Institut für Neurowissenschaften und Medizin – Nuklearchemie (INM-5) am Forschungszentrum Jülich durchgeführt. Zur Bestimmung der Energie und des Partikelflusses, wurden die ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, x){}^{66/67}\text{Ga}$ – Monitorreaktionen genutzt. Die Aktivitäten der erzeugten Radionuklide wurden mittels Gammaspektroskopie bestimmt. Die Wirkungsquerschnitte wurden mithilfe der Aktivierungsgleichung berechnet. Die Anregungsfunktionen der ${}^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x){}^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ – Reaktionen sind bereits in der Literatur bekannt. Da sich jedoch Abweichungen zwischen den verschiedenen Literaturwerten und den theoretischen Berechnungen zeigen, wurde eine Überprüfung vorgenommen. Die experimentellen Ergebnisse wurden mit den Literaturwerten sowie theoretischen TALYS-Berechnungen und TENDL-2025-Daten verglichen und diskutiert. Durch die Berechnung der integralen Ausbeute konnte gezeigt werden, dass durch die ${}^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x){}^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ -Reaktionen genügend hohe ${}^{93\text{m}}\text{Mo}$ - und ${}^{99}\text{Mo}$ -Aktivitäten für die Optimierung des ${}^{99}\text{Mo}/{}^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Generatorsystems erzeugt werden können.

2.2.3 Eigene Beiträge zur Veröffentlichung

Die in dieser Veröffentlichung beschriebenen Experimente wurden selbstständig durchgeführt. Dies umfasste die Anfertigung der Targets und deren Anbringung am Bestrahlungsrohr des Zyklotrons. Die Bedienung des Zyklotrons erfolgte durch die Zyklotronoperateure. Die bestrahlten Targets wurden selbstständig demontiert und die gammaspektroskopischen Messungen durchgeführt. Die Auswertungen der Gammaspektren und die Berechnungen der Wirkungsquerschnitte wurden selbstständig durchgeführt. Die theoretischen TALYS-Berechnungen und ein Entwurf des zugehörigen Textbausteins für das Manuskript wurden von L. Mues beigesteuert. Das Manuskript und die darin enthaltenen Abbildungen wurden ebenfalls selbstständig angefertigt.

Cross-section measurements of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, \text{x})^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ reactions up to 30 MeV

Andreas Dragoun^{1,2}, Lucas Mues², Ingo Spahn², Erik Strub¹, Bernd Neumaier^{1,2,3},
Johannes Ermert^{2*}

¹ Division of Nuclear Chemistry, Department of Chemistry and Biochemistry, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, University of Cologne, 50674 Cologne, Germany

² Institute of Neuroscience and Medicine – Nuclear Chemistry (INM-5), Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich, Germany

³ Institute of Radiochemistry and Experimental Molecular Imaging Faculty of Medicine and University Hospital Cologne, University of Cologne, 50937 Cologne, Germany

* Corresponding author: j.ermert@fz-juelich.de

Received: 19 March 2026 / Accepted: 12 May 2026 / Published online: 04 June 2026

© The Author(s) 2026

Abstract

The nuclear reaction cross-sections of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, \text{x})^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ reactions were measured up to 30 MeV in six irradiation experiments using the stacked-foil technique. Irradiations were carried out at the level IV cyclotron IBA Cyclone 30 XP at INM-5, Forschungszentrum Jülich. The $^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, \text{x})^{66/67}\text{Ga}$ reactions served as monitor reactions to determine the α -particle flux and energy. The experimental data and the derived integral yield curves were compared with literature values, TENDL-2025 data and TALYS-2.0 calculations.

Keywords

Cross-section · α -particle beam · Cyclotron irradiation · Targetry ·

Molybdenum-93m · Molybdenum-99

Introduction

The radionuclide ^{99}Mo (half-life: 65.9 h), which decays mainly to the widely used diagnostic radionuclide $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (half-life: 6.01 h), is predominantly produced in nuclear reactors via the fission of highly enriched ^{235}U targets. This method presents significant proliferation concerns and generates considerable amounts of radioactive waste during the chemical processing of the irradiated targets. Moreover, recurring technical issues – such as scheduled maintenance and unexpected shutdowns of ageing reactor facilities – have repeatedly disrupted the supply chain. These vulnerabilities have prompted international efforts to develop alternative production methods for ^{99}Mo that are less dependent on reactor operation and uranium fission. In Germany, the Federal Ministry of Research, Technology and Space (BMFTR) initiated the research initiative *99MoBest*, which aims to establish sustainable, accelerator-based production routes. These include cyclotron irradiation and the use of accelerator-driven neutron sources, such as the planned Jülich High Brilliance Neutron Source (HBS) [1]. Comprehensive reviews of reactor- and accelerator-based production of ^{99}Mo and $^{99\text{m}}\text{Tc}$ are available [2,3], depicting that many alternative methods yield low-specific activity ^{99}Mo , and are often accompanied by unwanted molybdenum isotopic impurities. This poses challenges for compatibility with conventional $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generators, which were originally designed for high-specific activity fission-derived ^{99}Mo . In particular, the column materials and elution protocols must be adapted to efficiently handle material of low-specific activity. To support separation experiments, ^{99}Mo was produced through irradiation of natural zirconium metal with α -particles via the $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ reaction.

By adding known amounts of inactive $^{\text{nat}}\text{Mo}$, low-specific activity ^{99}Mo samples can be prepared. To optimize the cyclotron-based production of ^{99}Mo , it is crucial to determine the corresponding excitation functions, particularly with regard to the undesirable by-product $^{93\text{m}}\text{Mo}$ (half-life: 6.85 h), as this affects dosimetry during the processing of the target material.

The aim of this study is to determine the excitation functions for the cyclotron-based production of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and ^{99}Mo by irradiating natural zirconium metal with α -particle beams, with an emphasis on the low-energy region up to 20 MeV and an extension to 30 MeV overall. Particular attention is paid to energies around 20 MeV, since in this range only limited experimental cross-section data for the production of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ are available and the existing datasets for ^{99}Mo show inconsistencies. To monitor α -particle energy and flux, the $^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, \text{x})^{66/67}\text{Ga}$ monitor reactions were employed using the known ratio method. The experimental cross-sections were derived using the activation equation and compared with previously reported experimental data from the literature [4-14], with TENDL-2025 [15] evaluations and TALYS-2.0 calculations [16,17]. The substantial discrepancies between the different datasets – especially for ^{99}Mo production – together with the limited cross-section data in the energy range around 20 MeV for the formation of $^{93\text{m}}\text{Mo}$, indicate the necessity for a critical evaluation of the excitation functions in this energy region.

Experimental

Target preparation

Irradiations were carried out using the stacked-foil technique. Six target stacks were prepared and irradiated in six different irradiation experiments, each stack consisting of four types of metal foils: Zirconium target foils (99.9+ % purity, 0.025 mm thickness, Thermo Fisher Scientific), copper monitor foils (99.9 % purity, 0.01 mm thickness, Goodfellow), titanium catcher foils (99.6 % purity, 0.0125 mm thickness, Goodfellow) and aluminum foils for energy degradation (99.0 % purity, 0.010 mm thickness, Goodfellow; 99.999 % purity, 0.050 mm thickness, Goodfellow). The target stacks for irradiations 1 to 3 had a similar configuration, covering a large alpha-particle energy range with the five zirconium foils in each stack. For irradiations 4 to 6, the target stacks each contained two zirconium foils covering the energy range between 15-20 MeV, in order to obtain further data points for the excitation function leading to $^{93\text{m}}\text{Mo}$. All foils were cut to 13 mm discs, weighed using a high-precision analytical balance (± 0.0001 g accuracy), and were assembled into the screw-capped copper target holders [18]. The sequence of the foils in each stack was calculated using the Excel-based program *Stack* (developed at Forschungszentrum Jülich), which models energy loss through the foil arrangement based on the formalism of Bethe [19] and the stopping-power tables of Williamson et al. [20].

Irradiations and beam monitoring

To determine the α -particle flux and energy, $^{nat}\text{Cu}(\alpha, x)^{66/67}\text{Ga}$ monitor reactions were applied, as recommended by the IAEA [21] and Hermanne et al. [22]. Data analysis was performed using the isotope ratio method described by Piel et al. [23]. The copper foil was placed centrally within each stack, at an energy interval calculated to be 20.2 to 22.1 MeV, where the excitation functions for the production of ^{66}Ga and ^{67}Ga exhibit a steep slope, thus minimizing the energy uncertainty compared to the 30 MeV region at the top of the stack. Each copper foil was followed by a titanium foil to capture recoil nuclides. The irradiations were performed at the IBA Cyclone 30 XP cyclotron at the INM-5, a level IV cyclotron [24] with an incident α -particle energy of 30 MeV. Irradiation 1 used a mean beam current of 1.5 μA for 30 minutes. Irradiations 2 to 6 were carried out for 60 minutes each with a mean beam current of 1 μA .

Measurement of activity

Following the irradiations, the target stacks were disassembled, and the activities of the zirconium, copper and titanium foils were measured using high-resolution HPGe gamma-ray spectrometry (Ortec GEM-20190 detector). Measured peak areas were converted into counts, accounting for the gamma emission probability at each energy and the detector efficiency. The HPGe gamma ray detector efficiency was calibrated using standard gamma-ray point sources (^{241}Am , ^{133}Ba , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{54}Mn from Eckert & Ziegler; ^{226}Ra from the Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB)) at multiple sample-to-detector distances. For each measurement, a sufficiently large distance was chosen to minimize dead time ($< 10\%$) and reduce coincident summing effects. Counting times were adjusted to achieve reasonably low statistical uncertainties. Decay data for product identification and quantification were taken from the IAEA

Live Chart of Nuclides [25], and are summarized, together with the corresponding production routes, in Table 1. Table 2 shows the Q -values and threshold energies for these production routes. Gamma-ray spectra were analyzed with the GammaVision software (version 8.10.02, Advanced Measurement Technology, Inc.).

Table 1 Decay data [25] used in this work and production routes of the reaction products (values rounded). Only reaction pathways with threshold energies lower than 30 MeV are given, which are accessible with the cyclotron used in this work (see Table 2)

Nuclide	Production route	Half-life	Decay mode (%)	Energy of gamma emission (keV)	Intensity of gamma emission (%)
$^{93\text{m}}\text{Mo}$	$^{90}\text{Zr}(\alpha, \text{n})$	6.85 h	IT (99.88);	263.1	57.4
	$^{91}\text{Zr}(\alpha, 2\text{n})$		EC + β^+	684.7	99.9
	$^{92}\text{Zr}(\alpha, 3\text{n})$		(0.12)	1477.1	99.1
^{99}Mo	$^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{n})$	65.92 h	β^- (100)	739.5	12.2
	$^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{p})$ $^{99}\text{Nb} \xrightarrow{\beta^-} ^{99}\text{Mo}$				
^{66}Ga	$^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, \text{x})$	9.49 h	EC + β^+	833.5	5.9
			(100)	1039.2	37.0
^{67}Ga	$^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, \text{x})$	3.26 d	EC (100)	93.3	38.8
				300.2	16.6

Table 2 Q -values and threshold energies for the reactions leading to $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and ^{99}Mo . Values obtained from Q -Value Calculator [26] and adjusted to the isomeric state in case of $^{93\text{m}}\text{Mo}$

Nuclide	Production route	Q -value (MeV)	Threshold energy (MeV)
$^{93\text{m}}\text{Mo}$	$^{90}\text{Zr}(\alpha, \text{n})$	-10.04	10.32
	$^{91}\text{Zr}(\alpha, 2\text{n})$	-17.23	17.77
	$^{92}\text{Zr}(\alpha, 3\text{n})$	-25.87	26.71
^{99}Mo	$^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{n})$	-5.12	5.29
	$^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{p})^{99}\text{Nb}$	-7.97	8.24

Calculation of cross-sections and uncertainties

The reaction cross-section values were calculated using the well-known activation equation. For the production of $^{93\text{m}}\text{Mo}$, cumulative cross-sections were determined by summing all accessible reaction channels (see Table 1). The cross-sections for the formation of ^{99}Mo are also cumulative, as this nuclide is produced via the $^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{n})^{99}\text{Mo}$ reaction and the $^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{p})^{99}\text{Nb} \rightarrow ^{99}\text{Mo}$ reaction, the latter including subsequent β^- decay of ^{99}Nb (half-life: 15 s). The total uncertainty in each cross-section value was estimated using error propagation, accounting for contributions from mass of the metal foils (0.4 %), peak area (statistical uncertainty: 0.4 - 3.8 %), peak efficiency (uncertainty of the fitted curve; 0.1 - 2.0 %), decay data (1 %), and calculated α -particle flux (6.4 - 6.9 %). Consequently, the combined uncertainty of each measured cross-section value, obtained by error propagation, ranged from 6.5 to 7.9 %. The energy uncertainties of the measured cross-sections given in Tables 3 and 4 were calculated using the medium energy uncertainty provided from the technical specifications of the used cyclotron and data obtained from SRIM [27] simulations.

Theoretical calculations

To assess the experimentally determined reaction cross-sections, simulated nuclear cross-sections were generated using the TALYS code by Koning et al. [16,17]. In this study, TALYS-2.0 – the latest version designed for the evaluation of experimental datasets – was employed. The input parameters were taken from the RIPL-3 database maintained by the IAEA [28]. As in earlier versions, TALYS-2.0 integrates the ECIS code to model optical and direct reaction mechanisms [16]. For the simulation, default TALYS-2.0 settings were used: continuum levels were described with the back-shifted Fermi gas model [29], and optical model potentials (OMPs) for alpha interactions were adopted from the compilation by Koning and Delaroche [30]. Using these general parameters, reaction cross-sections of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x)$ reactions leading to $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and ^{99}Mo were calculated. The results are shown in Figs. 1 and 2 in comparison with TENDL-2025 data [15], which were adjusted according to the isotopic composition of the target material.

Results and discussion

Quantification of activity

Gamma spectroscopic measurements of the irradiated foils revealed that the titanium catcher foils, positioned behind the copper monitor foils, contained approximately 3 – 4 % of the total ^{66}Ga activity and 2 – 3 % of the total ^{67}Ga activity. Those activities were added to the corresponding activities found in the copper monitor foils used for α -particle flux and energy determination. In the gamma-ray spectra of the irradiated zirconium foils, several nuclides could be observed in addition to $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and ^{99}Mo depending on the α -particle energy, e.g., $^{92\text{m}}\text{Nb}$, $^{95\text{m}}\text{Nb}$, ^{95}Nb , ^{96}Nb and ^{89}Zr . The activities and cross-sections of these by-products were not determined, as this study focused on the investigation of the production of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and ^{99}Mo .

Cross-sections of the $^{nat}\text{Zr}(\alpha, x)^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction

The experimental cross-sections and associated uncertainties for the formation of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ are presented in Table 3 and illustrated in Fig. 1 together with literature data [4,5,9,13,14], TENDL-2025 predictions [15] and TALYS-2.0 calculations. For the comparison with TENDL-2025 data, the three contributing reaction channels $^{90}\text{Zr}(\alpha, n)$, $^{91}\text{Zr}(\alpha, 2n)$ and $^{92}\text{Zr}(\alpha, 3n)$ were considered, and the results corrected for natural abundance of the respective zirconium isotopes. As shown in Fig. 1, the experimental results agree with the TENDL-2025 curve in the low-energy region. Above 20 MeV, however, TENDL-2025 underestimates the cross-sections compared to the present data and those reported from Murata et al. [9] and Aliev et al. [4]. In contrast, the cross-sections reported by Thaslim et al. [5] and De La Vega Vedoya et al. [13] are shifted towards higher energies and deviate from both the other literature data and the

TENDL-2025 trend below 30 MeV. The values from Elbinawi et al. [14] agree well with the TENDL-2025 curve. The maximum of the TALYS-2.0 calculated curve is slightly shifted towards lower energy and a higher cross-section value. In the energy region after the maximum of the curve, the TALYS-2.0 calculations strongly underestimate the cross-section values and the TENDL-2025 curve, before aligning in the higher energy region. The new cross-section values in the 17-20 MeV energy range agree better with the TENDL-2025 curve than with the TALYS-2.0 curve. The cross-sections of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x)^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction are larger compared to those of the $^{93}\text{Nb}(p, n)^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction [31]. This is due to the high spin (21/2+) of $^{93\text{m}}\text{Mo}$, which is preferentially populated because the angular momentum of the α -particle is higher than that of the proton.

Table 3 Experimental cross-sections of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x)^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction

Irradiation 1		Irradiation 2		Irradiation 3	
Alpha particle energy (MeV)	Cross-section (mb)	Alpha particle energy (MeV)	Cross-section (mb)	Alpha particle energy (MeV)	Cross-section (mb)
26.7 ± 0.3	55.7 ± 3.9	28.0 ± 0.3	51.8 ± 3.7	27.9 ± 0.3	61.1 ± 4.2
23.8 ± 0.3	62.5 ± 4.4	25.2 ± 0.3	52.8 ± 3.7	25.2 ± 0.3	61.8 ± 4.3
18.1 ± 0.4	22.9 ± 1.6	19.1 ± 0.4	31.9 ± 2.3	22.2 ± 0.4	69.1 ± 4.8
14.2 ± 0.5	1.2 ± 0.1	15.4 ± 0.4	3.1 ± 0.2	16.8 ± 0.4	15.3 ± 1.0
-	-	-	-	12.8 ± 0.4	0.9 ± 0.1
Irradiation 4		Irradiation 5		Irradiation 6	
Alpha particle energy (MeV)	Cross-section (mb)	Alpha particle energy (MeV)	Cross-section (mb)	Alpha particle energy (MeV)	Cross-section (mb)
18.9 ± 0.4	56.0 ± 3.9	19.8 ± 0.4	60.3 ± 4.0	19.8 ± 0.4	56.3 ± 3.7
15.2 ± 0.4	7.9 ± 0.5	16.2 ± 0.5	10.9 ± 0.8	16.2 ± 0.4	11.8 ± 0.8

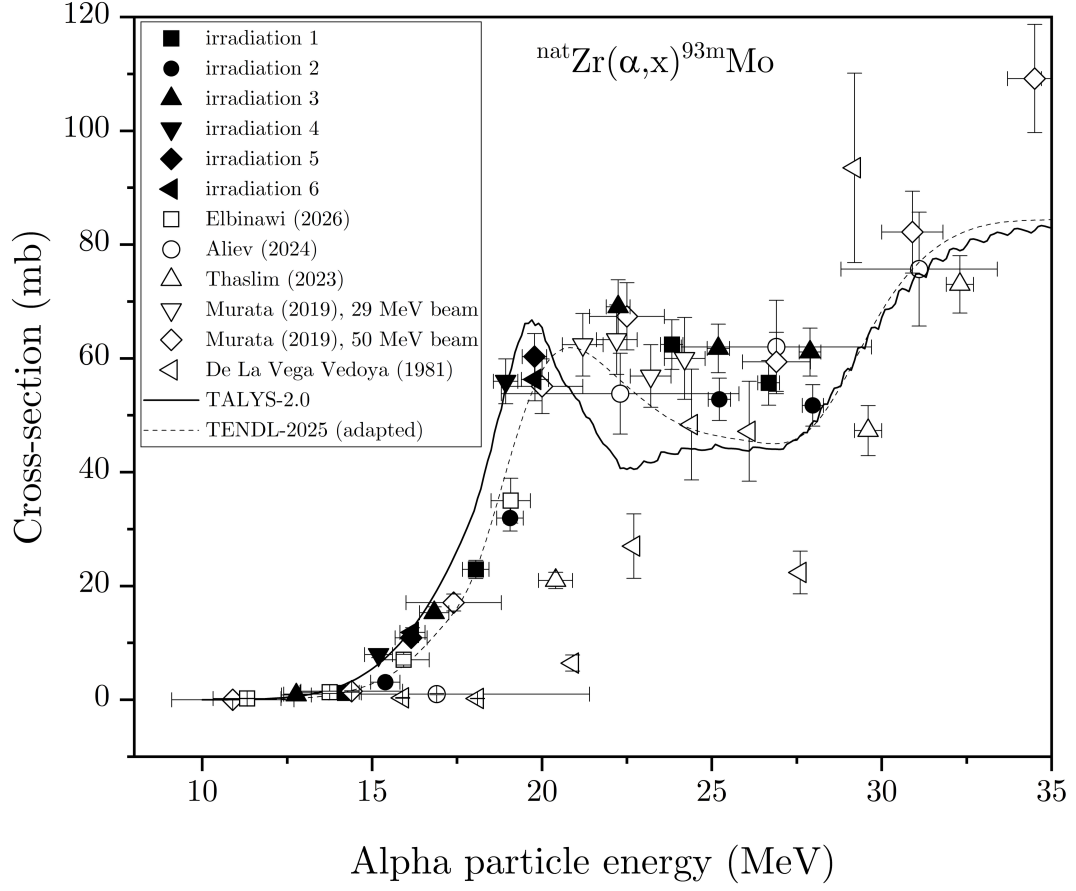


Fig. 1 Cross-section values of the ${}^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x){}^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction compared with literature data [4,5,9,13,14], TENDL-2025 data [15] and TALYS-2.0 calculations. The TENDL cross-sections shown here were converted to the natural isotopic composition of the involved Zr isotopes

Cross-sections of the $^{96}\text{Zr}(\alpha,n)^{99}\text{Mo}$ reaction

The experimental cross-section data for the formation of ^{99}Mo , including their uncertainties, are summarized in Table 4 for the six irradiations and are illustrated in Fig. 2 alongside literature data [5-12,14], TENDL-2025 [15] evaluations and TALYS-2.0 calculations. Since ^{99}Mo is produced exclusively from ^{96}Zr (see Table 1), the cross-sections are calculated for 100 % enrichment of ^{96}Zr , even when zirconium with a natural isotopic composition (containing 2.80 % of ^{96}Zr [25]) was used. This approach was also commonly adapted in the literature to enable direct comparison with published values [8,9,11]. Fig. 2 illustrates that the new experimental cross-sections are in good agreement with most of the literature. However, both the TENDL-2025 curve and the TALYS-2.0 calculated curve underestimate the maximum of the excitation function, but show good agreement in the low and high energy region. Using standard input parameters the TALYS-2.0 calculations reproduce the literature and TENDL-2025 data only at lower energies but otherwise appear to be insufficient to calculate the cross-sections of the $^{96}\text{Zr}(\alpha,n)^{99}\text{Mo}$ reaction. A notable deviation is the cross-section value for the first irradiation at 23.8 MeV, which appears to be shifted towards a higher cross-section value. The measured maximum value of the excitation function around 14 MeV is found to be lower compared with the data of Villa et al. [8], Murata et al. [9], Hagiwara et al. [10], however our results agree within the limits of uncertainty. The cross-section data from Pupillo et al. [11] show a strong energy shift of the two data points at 13 and 15 MeV, whereas the data of Chowdhury et al. [12] deviate significantly. The values reported by Thaslim et al. [5], Hamad et al. [6], Kiss et al. [7] and Elbinawi et al. [14] correspond to our results.

Table 4 Experimental cross-sections of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ reaction

Irradiation 1		Irradiation 2		Irradiation 3	
Alpha particle energy (MeV)	Cross- section (mb)	Alpha particle energy (MeV)	Cross- section (mb)	Alpha particle energy (MeV)	Cross- section (mb)
23.8 ± 0.3	64.5 ± 5.1	28.0 ± 0.3	23.7 ± 1.6	27.9 ± 0.3	26.1 ± 1.8
18.1 ± 0.4	118.4 ± 8.5	25.2 ± 0.3	29.6 ± 2.0	25.2 ± 0.3	33.8 ± 2.3
14.2 ± 0.5	204.0 ± 14.3	19.1 ± 0.4	75.9 ± 5.2	22.2 ± 0.4	44.5 ± 3.0
9.5 ± 0.6	9.6 ± 0.7	15.4 ± 0.4	186.0 ± 12.7	16.8 ± 0.4	146.0 ± 9.8
-	-	11.0 ± 0.5	38.9 ± 2.7	12.8 ± 0.4	181.9 ± 12.4
Irradiation 4		Irradiation 5		Irradiation 6	
Alpha particle energy (MeV)	Cross- section (mb)	Alpha particle energy (MeV)	Cross- section (mb)	Alpha particle energy (MeV)	Cross- section (mb)
18.9 ± 0.4	80.1 ± 5.3	19.8 ± 0.4	71.8 ± 4.7	19.8 ± 0.4	66.2 ± 4.3
15.2 ± 0.4	218.4 ± 14.6	16.2 ± 0.5	186.3 ± 12.2	16.2 ± 0.4	166.2 ± 10.9

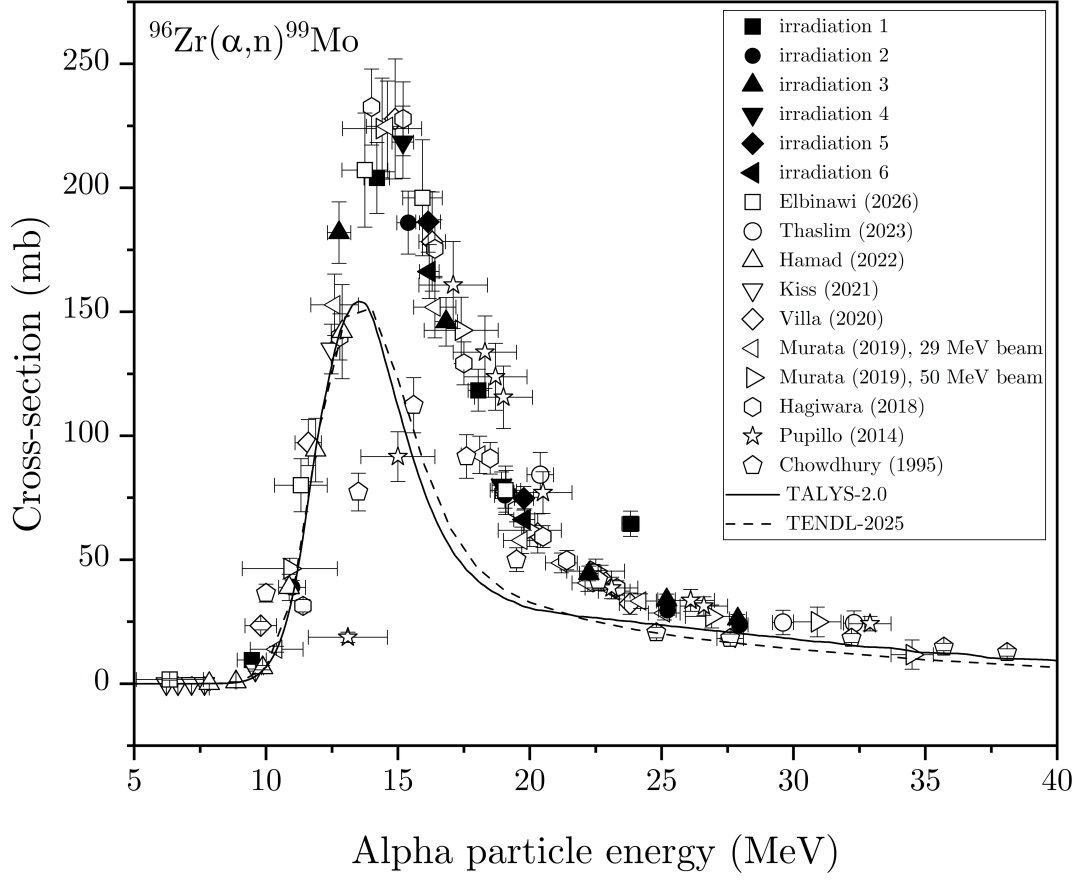


Fig. 2 Cross-section values of the $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ reaction compared with literature data [5-12,14], TENDL-2025 data [15] and TALYS-2.0 calculations

Integral yields

The integral yield curves for the production of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and ^{99}Mo were calculated using the fitted experimental cross-section curves, assuming an irradiation period of 1 h and a beam current of 1 μA . The corresponding yield curves for the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, \text{x})^{93\text{m}}\text{Mo}$ and $^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{n})^{99}\text{Mo}$ reactions are presented in Figs. 3 and 4. It should be noted that the measured cross-section value at an energy of 23.8 MeV was not included in the integral yield calculation for the $^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{n})^{99}\text{Mo}$ reaction due to its deviation from the other values. Furthermore, the integral yield curve for ^{99}Mo was calculated based on 100 % enrichment of ^{96}Zr . In case of the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, \text{x})^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction, limited literature data is available for comparison. The curve from Elbinawi et al. [14] shows a similar shape compared to the curve from the present work, but slightly higher integral yields occur above 20 MeV. Abe et al. [32] reported a single data point with a yield of 483 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}\cdot\text{h}$ (17.9 MBq) $^{93\text{m}}\text{Mo}$ at an energy of 27.2 MeV, which appears to be considerably inconsistent compared with the yield curve obtained of the present work and the work of Elbinawi et al. [14]. The yield curve of the $^{96}\text{Zr}(\alpha, \text{n})^{99}\text{Mo}$ reaction from this work is compared to the literature values from Elbinawi et al. [14], Murata et al. [9], Hagiwara et al. [10], Pupillo et al. [11] and Abe et al. [32] in Fig. 4. It shows good agreement with the curves from Murata et al. [9] and Hagiwara et al. [10], as well with the single data point from Abe et al. [32]. The curve from Elbinawi et al. [14] is shifted towards higher yield values. In contrast, the curve from Pupillo et al. [11] is shifted toward lower yields, likely due to differing identification of the excitation function maximum in their work. By irradiation of $^{\text{nat}}\text{Zr}$ for one hour with a beam current of 1 μA in the energy range 13 - 16 MeV, 0.2 MBq of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and 0.02 MBq of ^{99}Mo can be obtained. If enriched ^{96}Zr is irradiated under the same conditions, 0.75 MBq ^{99}Mo can be obtained.

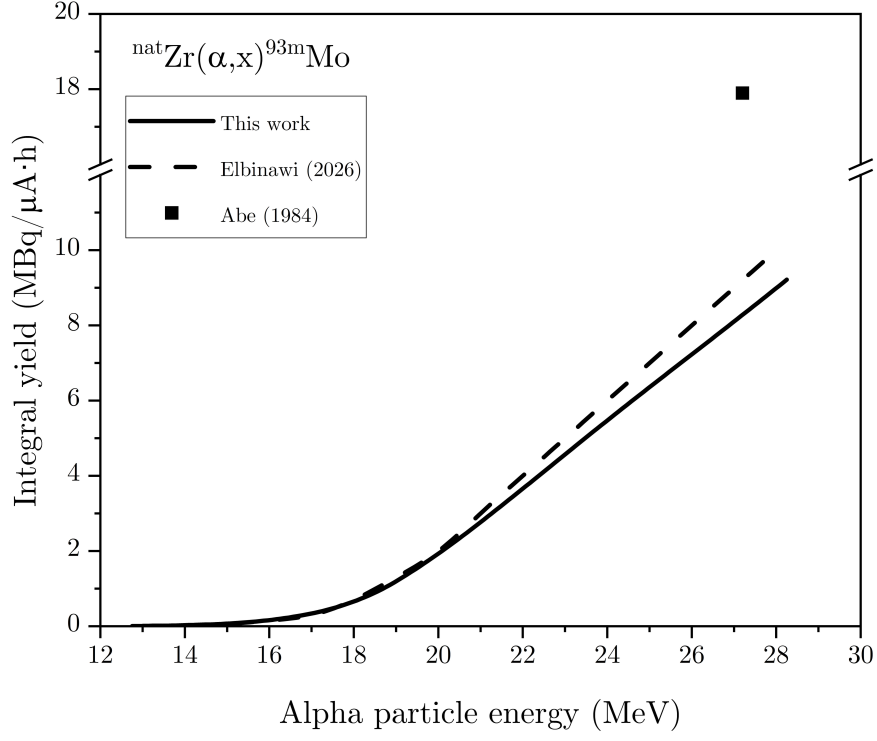


Fig. 3 Integral yield curve for the production of ^{93m}Mo compared with the yield curve of Elbinawi et al. [14] and the result of Abe et al. [32]. Since no tabulated data was available, the literature curve from Elbinawi et al. was digitized directly from the graph in the publication

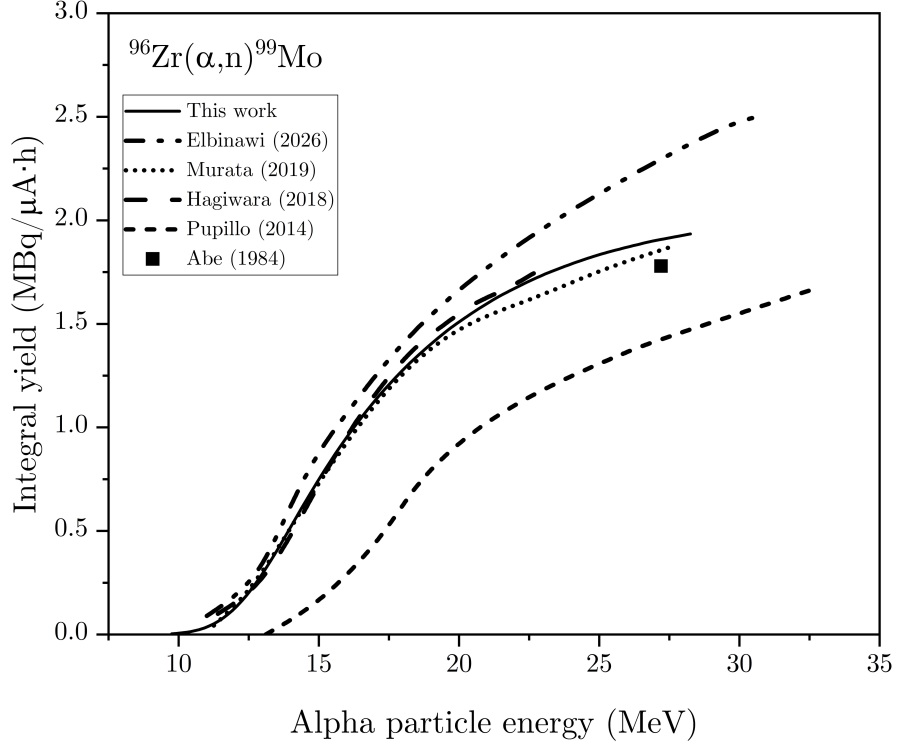


Fig. 4 Integral yields for the production of ^{99}Mo compared to the literature [9-11,14,32]. Since no tabulated data was available, the literature curves from Murata et al. [9], Hagiwara et al. [10], Pupillo et al. [11] and Elbinawi et al. [14] were digitized from the graphs in the publications. The data from Elbinawi et al. [14] was converted to ^{96}Zr enrichment of 100 % for comparison with the other literature data

Conclusions

The present study provides new experimental data for the production of ^{99}Mo and $^{93\text{m}}\text{Mo}$ via α -particle irradiation of natural zirconium metal at a cyclotron. The measured nuclear reaction cross-sections are largely consistent with previously reported experimental data and allow for a more precise localization of the maximum of the ^{99}Mo excitation function. Notable discrepancies, however, remain when compared with TENDL-2025 nuclear model predictions and TALYS-2.0 calculations. New cross-section values for the formation of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ were added to the low-energy region, and these values are overall consistent with theoretical predictions. It could be shown that the $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x)^{99}\text{Mo}$ reaction can produce ^{99}Mo in quantities sufficient to support experimental studies on $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ separation. However, this reaction pathway would not be competitive with other charged-particle reactions for the large-scale production of ^{99}Mo , due to limited availability of cyclotrons capable of accelerating alpha particles, as well as the low beam intensity and limited range of alpha particles in matter. The co-produced $^{93\text{m}}\text{Mo}$ must be considered, as it can serve as an easily detectable tracer nuclide in separation experiments on the one hand, but on the other hand its presence is undesirable because it increases radiation exposure during target handling. Nevertheless, the activity of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ is not expected to affect the radiation dose received by patients, since it will almost be completely decayed by the time the $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator is in use. Additionally, $^{93\text{m}}\text{Mo}$ behaves chemically in exactly the same way as ^{99}Mo and should not be eluted together with $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from the $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator column. Minimizing the production of $^{93\text{m}}\text{Mo}$ and increasing the yield of ^{99}Mo requires the use of highly enriched ^{96}Zr targets instead of natural zirconium.

Acknowledgements The authors are grateful to Stefan Spellerberg, Marina Birr, and Ingo Montag for technical support and performing the cyclotron irradiations at the INM-5. They also thank Prof. Dr. Syed M. Qaim for his valuable discussions and guidance throughout the project.

Author contributions A. Dragoun: Conceptualization, investigation, data curation, visualization, writing – original draft, writing – review & editing. L. Mues; Theoretical calculations, writing. I. Spahn: Investigation, validation. E. Strub: Validation. B. Neumaier: Supervision, writing – review & editing. J. Ermert: Supervision, conceptualization, writing – review & editing.

Funding Open Access funding enabled and organized by Projekt DEAL. This research was carried out as part of the *99MoBest collaboration* and was financially supported by the German Federal Ministry of Research, Technology and Space (BMFTR) under grant No. 02NUK080A.

Data availability The data can be made accessible upon reasonable request.

Declarations

Conflict of interests The authors declare no competing interests.

Open Access This article is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License, which permits use, sharing, adaption, distribution and reproduction in any medium or format, as long as you give appropriate credit to the original author(s) and the source, provide a link to the Creative Commons licence, and indicate if changes were made. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons licence, unless indicated otherwise in a credit line to the material. If material is not included in the article's Creative Commons

licence and your intended use is not permitted by statutory regulation or exceeds the permitted use, you will need to obtain permission directly from the copyright holder. To view a copy of this licence, visit <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>.

References

1. Gutberlet T, Rücker U, Mauerhofer E, Zakalek P, Cronert T, Voigt J, Baggemann J, Li J, Doege P, Böhm S, Rimmeler M, Felden O, Gebel R, Meusel O, Podlech H, Barth W, Brückel T (2020) Sustainable neutrons for today and tomorrow – the Jülich high brilliance neutron source project. *Neutron News* 31:37-43
2. Nawar MF, Türler A (2022) New strategies for a sustainable $^{99\text{m}}\text{Tc}$ supply to meet increasing medical demands: promising solutions for current problems. *Front Chem* 10:926258
3. Pillai MRA, Dash A, Knapp FFR Jr. (2013) Sustained availability of $^{99\text{m}}\text{Tc}$: possible paths forward. *J Nucl Med* 54:313-323
4. Aliev RA, Artiushova EV, Moiseeva AN, Kormazeva ES, Novikov VI (2024) Alpha-particles induced reactions on $^{\text{nat}}\text{Zr}$ as a pathway of medical ^{90}Nb production. *Appl Radiat Isot* 214:111544
5. Thaslim TTV, Musthafa MM, Midhun CV, Ghugre S, Gokul Das H, Swapna B, Najmunnisa T, Rijin NT, Dasgupta S, Datta J (2023) The total neutron production from the alpha induced reaction on natural zirconium. *Eur Phys J A* 59:167
6. Hamad G, Brandenburg K, Meisel Z, Brune CR, Carter DE, Ingram DC, Jones-Alberty Y, Massey TN, Saxena M, Soltesz D, Subedi SK, Voinov AV (2022) Measurements of the $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ cross section for astrophysics and applications. *Phys Rev C* 106:025804

7. Kiss GG, Szegedi TN, Morh P, Jacobi M, Gyürky G, Huszánk R, Arcones A (2021) Low-energy measurement of the $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ reaction cross section and its impact on weak r -process nucleosynthesis. *Astrophys J* 908:202
8. Villa NE, Skuridin VS, Golovkov VM, Garapatsky AA (2020) Cross section of the $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ reaction induced by α -particles beams on $^{\text{nat}}\text{Zr}$ targets. *Appl Radiat Isot* 166:109367
9. Murata T, Aikawa M, Saito M, Ukon N, Komori Y, Haba H, Takács S (2019) Production cross sections of Mo, Nb and Zr radioisotopes from α -induced reaction on $^{\text{nat}}\text{Zr}$. *Appl Radiat Isot* 144:47-53
10. Hagiwara M, Yashima H, Sanami T, Yoani S (2018) Measurement of the excitation function of $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ for an alternative production source of medical radioisotopes. *J Radioanal Nucl Chem* 318:569-573
11. Pupillo G, Esposito J, Gambaccini M, Haddad F, Michel N (2014) Experimental cross section evaluation for innovative ^{99}Mo production via the (α, n) reaction on ^{96}Zr target. *J Radioanal Nucl Chem* 302:911-917
12. Chowdhury DP, Pal S, Saha SK, Gangadharan S (1995) Determination of cross section of α -induced nuclear reaction on natural Cr and Zr by stacked foil activation for thin layer activation analysis. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 103:261-266
13. De La Vega Vedoya M, Wasilevsky C, Nassiff SJ (1981) Alpha particle induced reactions on zirconium. *J Radioanal Chem* 67:165-181
14. Elbinawi A, Ali BM, Zaghloul AM, Al-Abyad M, Ditroi F, El-anwar N (2026) Investigation of alpha-particles interaction with zirconium: cross-section measurements and isomeric cross-section ratios. *Appl Radiat Isot* 231:112510
15. Rochman D, Koning A, Goriely S, Hilaire S (2025) TENDL-astro: a new nuclear data set for astrophysics interest. *Nucl Phys A* 1053:122951
16. Koning AJ, Hilaire S, Duijvestijn MC (2007) TALYS-1.0. ND 2007 – International conference on nuclear data for science and technology, EDP Science

17. Koning AJ, Rochman D (2012) Modern nuclear data evaluation with the TALYS code system. Nucl Data Sheets 113:2841-2934
18. Spellerberg S, Scholten B, Spahn I, Bolten W, Holzgreve M, Coenen HH, Qaim SM (2015) Target development for diversified irradiations at a medical cyclotron. Appl Radiat Isot 104:106-112
19. Bethe HA (1940) A continuum theory of the compound nucleus. Phys Rev 57:1125-1144
20. Williamson CF, Boujot J-P, Picard J (1966) Tables of range and stopping power of chemical elements for charged particles of energy 0.05 to 500 MeV. Rapport CEA-R3042, Commissariat à l'Energie Atomique, Département de Physique Nucléaire, Service de Physique Nucléaire à Basse Energie
21. IAEA Monitor reactions (2017)
https://www-nds.iaea.org/medical/monitor_reactions.html
22. Hermanne A, Ignatyuk AV, Capote R, Carlson BV, Engle JW, Kellett MA, Kibédi T, Kim G, Kondev FG, Hussain M, Lebeda O, Luca A, Nagai Y, Naik H, Nichols AL, Nortier FM, Suryanarayana SV, Takács S, Tárkányi FT, Verpelli M (2018) Reference cross sections for charged-particle monitor reactions. Nucl Data Sheets 148:338-382
23. Piel H, Qaim SM, Stöcklin G (1992) Excitation functions of (p,xn)-reactions on ^{nat}Ni and highly enriched ⁶²Ni: possibility of production of medically important radioisotope ⁶²Cu at a small cyclotron. Radiochim Acta 57:1-5
24. Qaim SM (2020) Medical radionuclide production – science and technology. Walther de Gruyter GmbH, Berlin/Boston
25. IAEA Live chart of nuclides.
<https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>
26. Brookhaven National Laboratory: Q-value calculator (QCalc).
<https://www.nndc.bnl.gov/qcalc/>
27. Ziegler JF (2013) SRIM-2013 – The stopping and range of ions in matter.

<https://www.srim.org>

28. Capote R, Herman M, Oblozinsky P, Young PG, Goriely S, Belgya, T, Ignatyuk AV, Koning AJ, Hilaire S, Plujko VA, Avrigeanu M, Bersillon O, Chadwick MB, Fukahori T, Ge Z, Han Y, Kailas S, Kopecky J, Maslov VM, Reffo G, Sin M, Soukhovitskii ES, Talou P (2009) RIPL – reference input parameter library for calculation of nuclear reactions and nuclear data evaluations. Nucl Data Sheets 110:3107-3214
29. Gilbert A, Cameron AGW (1965) A composite nuclear-level density formula with shell corrections. Can J Phys 43:1446-1496
30. Koning AJ, Delaroche JP (2003) Local and global nucleon optical models from 1 keV to 200 MeV. Nucl Phys A 713:231-310
31. Dragoun, A, Spahn I, Hussain M. Strub E, Neumaier B, Ermert J (2025) Cross-section measurements of the $^{93}\text{Nb}(p,n)^{93\text{m}}\text{Mo}$ reaction up to 17 MeV. J Radioanal Nucl Chem 334:5149-5154
32. Abe K, Iizuka A, Hasegawa A, Morozumi S (1984) Induced radioactivity of component materials by 16-MeV protons and 30-MeV alpha particles. J Nucl Mater 122&123:972-976

Publisher's Note Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

2.3 Veröffentlichung 3: First production of the medical radionuclide ^{103}Pd from ^{99}Tc and determination of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ nuclear reaction cross-sections between 20 and 34 MeV

2.3.1 Angaben zur Veröffentlichung

Andreas Dragoun, Michael Weinert, Anna Bohn, Bernd Neumaier, Johannes Ermert, Erik Strub First production of the medical radionuclide ^{103}Pd from ^{99}Tc and determination of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ nuclear reaction cross-sections between 20 and 34 MeV. Manuskript eingereicht in *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **2026**.

Dieses Manuskript wurde im Jahr 2026 im Peer-Review Journal *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* eingereicht und befindet sich im Review-Prozess.

2.3.2 Zusammenfassung der Veröffentlichung

In dem folgenden Manuskript wurde das in der Nuklearmedizin eingesetzte Radionuklid ^{103}Pd erstmals durch die Bestrahlung von ^{99}Tc mit ^7Li -Ionen erzeugt. Die Wirkungsquerschnitte der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ -Reaktion wurden im Energiebereich von 20 bis 34 MeV bestimmt. Das Maximum der Anregungsfunktion wurde bei etwa 30 MeV beobachtet. Bei einer Energie von 34 MeV zeigt sich vermutlich der Einfluss des $(^7\text{Li},4\text{n})^{102}\text{Pd}$ -Reaktionskanals, so dass die Anregungsfunktion erneut ansteigt. Als Target diente eine elektrolytische Abscheidung von ^{99}Tc auf Goldfolie, die durch Elektrolyse einer Ammoniumpertechnetat-Lösung erhalten wurde. Die Menge an abgeschiedenem ^{99}Tc wurde mittels RBS-Messungen bestimmt. Die Bestrahlungen fanden am 10 MV FN-Tandem-Beschleuniger des Instituts für Kernphysik an der Universität zu Köln statt. Anstatt die niederenergetische Gammastrahlung mit geringer Intensität zu messen, die beim radioaktiven Zerfall von ^{103}Pd entsteht, wurde während der Bestrahlung die prompte Gammastrahlung gemessen, die von angeregten ^{103}Pd -Kernen emittiert wird. Die Messung der Gammastrahlung erfolgte mit dem HORUS-Setup, das aus 14 HPGe-Detektoren besteht, welche die Targetkammer kugelförmig umgeben.

2.3.3 Eigene Beiträge zur Veröffentlichung

Das ^{99}Tc -Target wurde mittels elektrolytischer Abscheidung selbstständig hergestellt. Der Einbau der Targets in die Targetleiter erfolgte selbstständig. Die Auswertung der gemessenen Gammaspektren sowie die Berechnung der Effizienzen der Gammadetektoren und die Berechnung der Wirkungsquerschnitte erfolgten ebenfalls selbstständig. Die Bestrahlungen wurden von den Beschleunigeroperatoren und die HORUS-Messungen von M. Weinert durchgeführt. Die RBS Messungen wurden von A. Bohn, S. Heinze und M. Müller durchgeführt und von E. Strub ausgewertet. M. Weinert und E. Strub steuerten Textbausteine für das Manuskript über die RBS-Messungen bzw. über den Messaufbau bei. Das Manuskript und die darin enthaltenen Abbildungen wurden ebenfalls selbstständig angefertigt.

First production of the medical radionuclide ^{103}Pd from ^{99}Tc and determination of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ nuclear cross-sections between 20 and 34 MeV

Andreas Dragoun^{1,2}, Michael Wienert^{3,4}, Anna Bohn⁴, Bernd Neumaier^{1,2,5},
Johannes Ermert^{1,2}, Erik Strub^{1*}

¹ Division of Nuclear Chemistry, Department of Chemistry and Biochemistry, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, University of Cologne, 50674 Cologne, Germany

² Institute of Neuroscience and Medicine – Nuclear Chemistry (INM-5), Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich, Germany

³ GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung GmbH, 64291 Darmstadt, Germany

⁴ Institute of Nuclear Physics, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, University of Cologne, 50937 Cologne, Germany

⁵ Institute of Radiochemistry and Experimental Molecular Imaging, Faculty of Medicine and University Hospital Cologne, University of Cologne, 50937 Cologne, Germany

* Corresponding author: erik.strub@uni-koeln.de

Abstract

^{103}Pd is a possible candidate for radiation therapy using Auger-Meitner electrons. The cross-sections of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ nuclear reaction were measured for the first time in the energy range from 20 MeV to 34 MeV using the 10 MV FN-Tandem Accelerator at the Institute of Nuclear Physics, University of Cologne. The ^{99}Tc target was prepared by electrodeposition of ammonium pertechnetate onto gold foil. The thickness of the technetium layer was determined by Rutherford backscattering (RBS). The number of produced ^{103}Pd nuclei was quantified with the HORUS setup by measuring prompt γ -

rays emitted from excited ^{103}Pd nuclei in parallel to irradiation (in-beam γ -ray spectroscopy). The maximum of the excitation function was found at an energy of 30 MeV. At higher projectile energies, contributions from the competing $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},4\text{n})^{102}\text{Pd}$ reaction channel are likely to affect the observed cross-sections.

Keywords

Technetium-99 · Palladium-103 · Lithium-7 ion beam · Electrodeposition · Thin film · In-beam γ -ray spectroscopy · Rutherford backscattering (RBS)

Introduction

The radionuclide ^{99}Tc is only rarely used as target material in nuclear reactions, although it accumulates in large quantities in spent nuclear fuel and its further use could contribute to a reduction of long-lived radioactive waste. Owing to its long half-life of $2.111 \cdot 10^5$ years [1], and its low beta energy, the handling of ^{99}Tc even in gram amounts does not require heavy shielding. Various neutron-induced reactions on ^{99}Tc have been investigated, such as $^{99}\text{Tc}(\text{n},\gamma)^{100}\text{Tc}$ (Furutaka et al. [2], Qaim [3]), $^{99}\text{Tc}(\text{n},\text{p})^{99}\text{Mo}$ (Golchert et al. [4], Reimer et al. [5], Qaim [3]), $^{99}\text{Tc}(\text{n},2\text{p})^{98}\text{Nb}$ (Qaim [3]), $^{99}\text{Tc}(\text{n},\alpha)^{96}\text{Nb}$ (Golchert et al. [4], Reimer et al. [5], Qaim [3]), and $^{99}\text{Tc}(\text{n},^3\text{He})^{97}\text{Nb}$ (Qaim [3]). In contrast charged-particle-induced reactions on technetium have been studied to a much lesser extent. The $^{99}\text{Tc}(\text{p},3\text{n})^{97}\text{Ru}$ reaction was investigated by Zaitseva et al. [6] up to 100 MeV proton energy. Titarenkov et al. [7] reported irradiations of ^{99}Tc with high energy protons between 0.1 GeV and 2.6 GeV energy. However, no experimental data for irradiations with heavier projectiles like α -particles or ^7Li ions can be found in the literature. The $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction investigated

in this work leads to the formation of the medically relevant radionuclide ^{103}Pd (half-life: 16.99 d), which decays by electron capture to $^{103\text{m}}\text{Rh}$ (half-life: 56.1 min). Because the associated γ -ray intensities are very low, the activity of ^{103}Pd cannot be quantified accurately by conventional post-irradiation γ -ray spectrometry. The weak γ -emission is accompanied by high emission yields of conversion electrons (CE) and Auger-Meitner electrons (AME). In radiotherapy, this allows for the radiation of small tumours (e.g. metastases) without applying radiation dose to the surrounded tissue. These electrons are used in nuclear medicine in prostate brachytherapy [8,9]. Current research is focusing on the use of ^{103}Pd , alongside ^{177}Lu and ^{161}Tb , in the targeted radionuclide therapy (TRT) [10] to treat prostate cancer. ^{103}Pd has mainly been produced by proton irradiation either via the $^{\text{nat}}\text{Ag}(\text{p},\text{x})^{103}\text{Pd}$ reaction as investigated e.g. by Fassbender et al. [11], Uddin et al. [12], Katcoff et al. [13], or via the $^{103}\text{Rh}(\text{p},\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction as described e.g. by Sudar et al. [14] and Hermanne et al. [15]. A comprehensive evaluation of charged-particle induced reactions leading to ^{103}Pd can be found in [16]. Compared with these established methods, production of ^{103}Pd via the $^{99}\text{Tc}({}^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction offers relatively simple chemical separation of the product nuclide from the target material. Under oxidative conditions technetium is present as an anion, whereas the other commonly used target materials (Ag, Rh) and Pd occur as cations in acidic solution. Consequently, ^{103}Pd can be separated from the Tc by cation-exchange chromatography more straightforwardly than from Ag or Rh based targets. In this study, however, no chemical separation was carried out, as the Tc target is to be used for other experiments. A major limitation of this production route is the limited availability of accelerators capable of delivering ${}^7\text{Li}$ ion beams with sufficiently high beam currents. This capability is typically not provided by commercial cyclotrons.

In this work, the production method of ^{103}Pd via the $^{99}\text{Tc}({}^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction is investigated for the first time. The excitation function of the $^{99}\text{Tc}({}^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction was measured in the energy region from 20 MeV to 34 MeV by irradiating a thin film of ^{99}Tc deposited on gold foil. This would enable a simple chemical processing of the

target material because it can selectively be etched from the target with various acids without dissolving the gold foil. The irradiations were performed at the 10 MV FN-Tandem Accelerator at the Institute of Nuclear Physics, University of Cologne. The number of produced ^{103}Pd nuclei was determined with the HOURS [17,18] setup by measuring the γ -rays emitted from excited ^{103}Pd nuclei in parallel to irradiation (in beam γ -ray spectroscopy).

Experimental

Target preparation

The ^{99}Tc target was produced by electrodeposition from an aqueous ammonium pertechnetate solution, following the procedure reported by Voltz and Holt [19]. The electrolyte consisted of the ^{99}Tc stock solution (ammonium pertechnetate in 0.1 M NH_4OH , Amersham, England; 17.6 MBq/mL, 0.28 mol/L) and ammonium sulfate (for molecular biology, $\geq 99.0\%$, Sigma, Germany) solution (1 mol/L). The ammonium pertechnetate solution was filtered through a PTFE syringe filter before use. The pH of the electrolyte was adjusted to 1 by the addition of concentrated sulfuric acid (Suprapur[®], min. 96 %, Merck, Germany). The electrolysis cell (Fig. 1), fabricated from PLA, featured a circular opening with a diameter of 10 mm and at its base a gold foil (99.9 %, 200 mg, 50 μm , Goodfellow) of 15 mm diameter was placed. The gold foil (anode) was in electrical contact with the steel base and served as the working electrode. A platinum wire as the cathode and an Ag/AgCl (in 3 M KCl solution) reference electrode were immersed in the electrolysis solution from the top side. The electrolysis cell was mounted on a Peltier cooling element operated at 5 V DC, to suppress the forming of hydrogen. The Peltier element was coupled to an ice bath to ensure efficient heat dissipation. The three electrodes were connected to a potentiostat (Ossila T2006)

and a potential of -0.85 V was applied for 60 minutes. Following electrolysis, a shiny silver-grey metallic deposit was obtained.

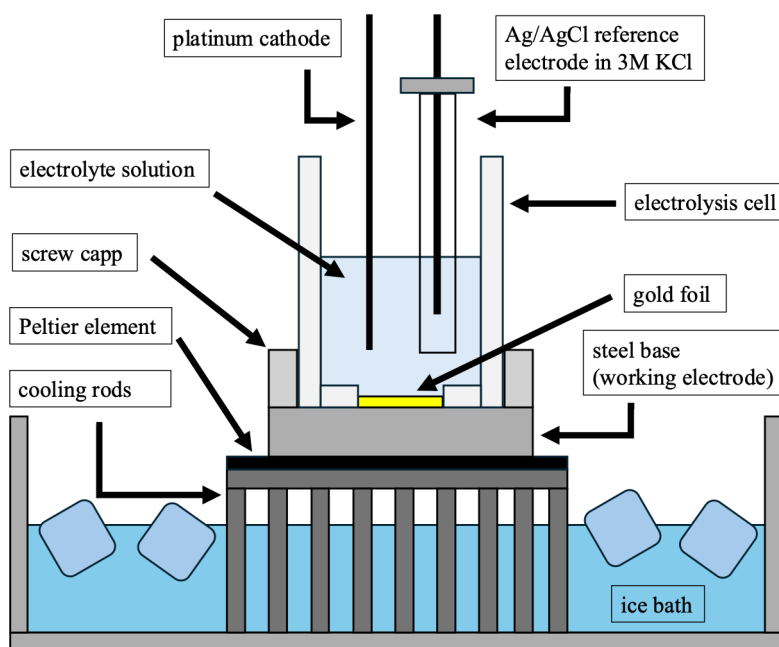


Fig. 1. Sketch of the electrodeposition setup used for the production of the ^{99}Tc target

Measurement of target thickness

The thickness of the technetium layer on the Tc/Au target was determined by Rutherford backscattering (RBS) at the Cologne AMS 6 MV Tandetron Accelerator of the Institute of Nuclear Physics, University of Cologne, using a beam of 7 MV ^9Be ions. Measurements were performed on four different positions on the target surface. The spectra were evaluated with the software *SIMNRA* [20]. The target was modelled within *SIMNRA* as a two-layer system consisting of pure technetium and pure gold, respectively. All spectra were fitted with the same values for energy resolution. Likewise, the same roughness corrections were applied to all simulations. The electronic stopping powers were calculated using the Ziegler-Biersack model. The RBS analysis yielded consistent areal densities for the technetium layer at all four measurement positions ($4.3 \cdot 10^{18}$, $4.55 \cdot 10^{18}$, $4.4 \cdot 10^{18}$ and $4.55 \cdot 10^{18}$ atoms/cm², respectively), indicating uniform electrolytic deposition of the technetium on the gold foil. A marginally improved fit quality within *SIMNRA* was obtained by applying a correction factor of 0.85 to the stopping power of beryllium in gold. However, this adjustment had no significant effect on the derived layer thickness. The overall uncertainty of the *SIMNRA* fitting was conservatively estimated to be approximately 5 %. The determined average areal density of $4.45 \cdot 10^{18}$ atoms/cm² is corresponding to a technetium layer thickness of 0.63 ± 0.03 μm , assuming the bulk density of metallic technetium. This value is in good agreement with independent estimates based on the decrease in activity of the technetium solution during electrolytic deposition. The latter was assessed by liquid scintillation counting (LSC) of the electrolytic solution before and after deposition. However, this approach is considered less accurate, as it does not account for potential technetium losses due to adsorption of Tc, e.g. on the surface of the electrolysis cell or the reference electrode.

Irradiation and measurement setup

To determine the excitation function of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction, the ^{99}Tc target was irradiated at the 10 MV FN-Tandem Accelerator Laboratory at the University of Cologne, using a ^7Li beam in the 3+ charge state at beam energies from 20 MeV to 34 MeV with average beam currents of 5 nA to 10 nA. The prompt γ -rays emitted from excited ^{103}Pd nuclei were detected during the irradiation (in beam γ -ray spectroscopy) with the HORUS γ -ray spectrometer [17] (see Fig. 2). The experimental setup consisted of 14 High-Purity-Germanium detectors (HPGe) positioned at five different angles (35° , 45° , 90° , 135° , and 145°) relative to the beam axis. Prior to irradiation, the detectors were energy and efficiency calibrated using a ^{226}Ra standard source with a summed full-energy-peak efficiency of 0.1 % to 0.4 % at 1.12 MeV and of 0.2 % to 1 % at 242 keV. An electrically isolated target chamber was installed within the HORUS spectrometer, enabling direct measurement of the accumulated beam charge and thus the determination of absolute reaction cross-sections [18]. To suppress γ -ray background originating from scattered beam particles interacting with the aluminium chamber walls, the interior surfaces of the chamber are coated with a thin tantalum layer. Particular attention was paid to preventing unintended electrical contact between chamber components and ground. In addition, the chamber was equipped with a motorized, electrically isolated target ladder, allowing convenient switching between target and aperture positions without compromising the electrical isolation of the setup.

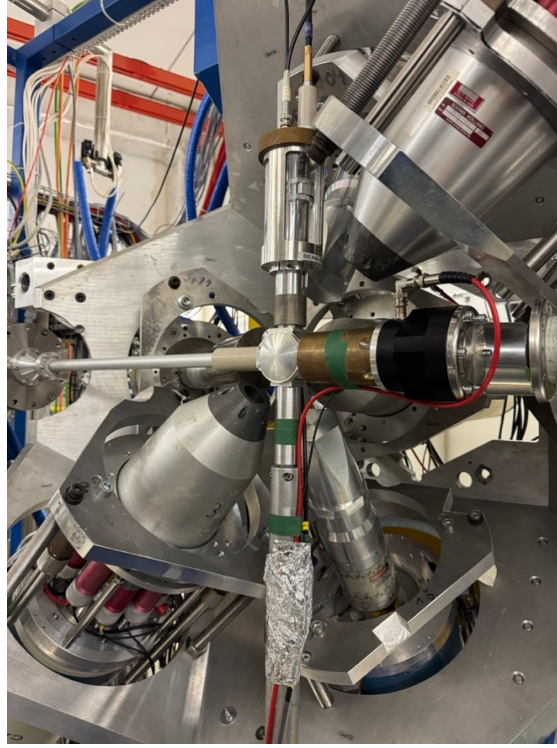


Fig. 2 Part of the HORUS γ -ray spectrometer. Beam direction from the left side. Target chamber and target ladder in the middle surrounded by HPGe γ -ray detectors

Besides an empty frame and a 3 mm aperture for beam focusing, the ladder was equipped with the $^{99}\text{Tc}/\text{Au}$ target itself and a thick gold target for later gold background subtraction (Fig. 3). Both gold layers (Tc/Au target and Au target) were selected to be sufficiently thick to completely stop the unreacted ^7Li ion beam on target position. Irradiation times were typically 30 to 45 minutes for the Tc/Au target and approximately 10 minutes for the Au target, yielding excellent counting statistics in each detector and at each beam energy. Depending on the beam energy and target, total HPGe count rates ranged from 5 kcps to 20 kcps. Detector dead times were monitored online by the digital data acquisition system and varied between 1.8 % to 28.5 %. The incident beam current was measured using a digital current-integration system that independently recorded the currents collected on the target ladder and on the target chamber. To suppress the loss of secondary electrons, a bias voltage of -400 V

was applied to an aperture located at the entrance of the target chamber. This voltage reflected δ -electrons generated by the beam back onto the chamber, resulting in a negative current contribution on the chamber. The total number of incident beam particles for each irradiation was determined from the sum of the positive charge accumulated on the target ladder and the negative charge accumulated on the chamber, taking into account the charge state of the beam ions.

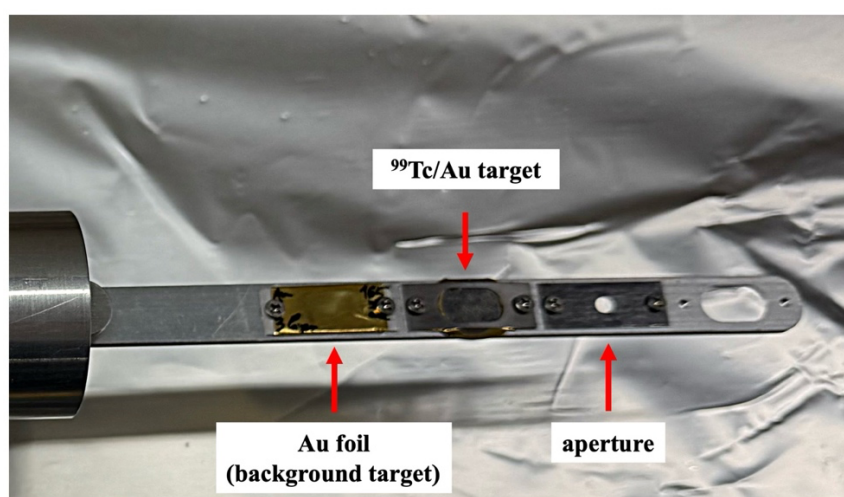


Fig. 3 Target ladder used for the irradiations. The Au foil (left) for background correction, the $^{99}\text{Tc}/\text{Au}$ target (middle) and the aperture (right) can be seen

Results and discussion

For the determination of the cross-sections, it was assumed that ^{103}Pd is exclusively formed in a compound state which decays via a γ -ray cascade through any of the first (few) excited states and that direct population of the ground state does not occur, which is considered a reasonable assumption for the used projectile energies and reaction channel. The excited states of ^{103}Pd de-excite through a cascade of γ -ray transitions involving the excited states at 243.96 keV (nuclear spin state $7/2+$), 531.97 keV ($7/2+$) and 718.02 keV ($9/2+$), each of which ultimately de-excites to the ground state ($5/2+$) [21]. Intensity correction factors were derived based on the level scheme reported in [21], taking into account the other decay branches of states tagged into the respective ground state γ -ray decay, to be 1.02 for the 243.96 keV transition, 1.11 for the 531.97 keV transition and 1.07 for the 718.02 keV transition. The gold background γ -ray spectra were normalized to the prompt gamma line at 279 keV which occurs in the Tc/Au target as well as the Au target and then subtracted from the cumulated γ -ray spectra of the irradiated Tc/Au target (Fig. 4).

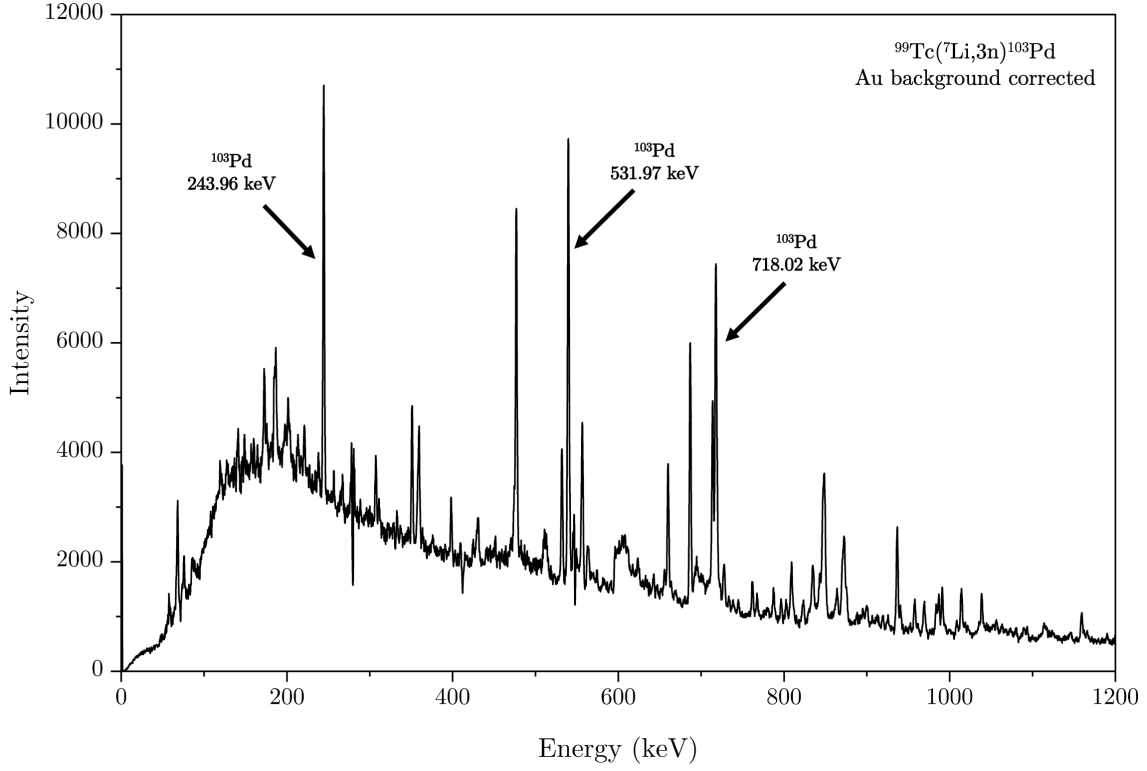


Fig. 4 Cumulated in beam prompt γ -ray spectrum of ^{103}Pd (Au background corrected) from irradiation of $^{99}\text{Tc}/\text{Au}$ with 26 MeV $^7\text{Li}^{3+}$. Only the most prominent peaks of ^{103}Pd are marked here, which were used in the evaluation

The number of nuclei decays N at energy E from each of these states was calculated according to equation 1 from the measured γ -ray peak areas A_{peak} from the Au background corrected γ -ray spectrum considering the detector efficiency ε_{det} at Energy E , the intensity of the γ -ray emission I_{γ} , the γ -ray emission correction factor c_{γ} , and the dead time correction factor t_{dead} .

$$N(E) = \frac{A_{\text{peak}}}{\varepsilon_{\text{det}} \cdot I_{\gamma} \cdot c_{\gamma} \cdot (1 - t_{\text{dead}})} \quad (\text{Eq. 1})$$

Summation over all three transitions yields the total number of produced ^{103}Pd nuclei N_{total} , because it is assumed that all transitions from higher states inevitably cross one

of these three states before decaying into the ground state. The total cross-section value σ for each detector was calculated according to equation 2 considering the number of ^{99}Tc target nuclei N_{Tc} , the $^7\text{Li}^{3+}$ particle φ per cm^2 and the conversion factor $10^{27} \frac{\text{mb}}{\text{cm}^2}$ for conversion of square centimetre to millibarn.

$$\sigma = \frac{N_{\text{total}} \cdot 10^{27} \frac{\text{mb}}{\text{cm}^2}}{N_{\text{Tc}} \cdot \varphi} \quad (\text{Eq. 2})$$

The so obtained cross-sections for each detector angle are given in Table 1.

Table 1 Total cross-section values of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction determined from the 35° , 45° , 90° , 135° and 145° detector rings (mean values of the total cross-sections for each detector angel). Given uncertainties are the standard deviations

Energy (MeV)	Mean cross- section (mb) detector angle 35°	Mean cross- section (mb) detector angle 45°	Mean cross- section (mb) detector angle 90°	Mean cross- section (mb) detector angle 135°	Mean cross- section (mb) detector angle 145°
20	46.1 $\pm$ 0.8	52.8 $\pm$ 3.1	40.2 $\pm$ 2.6	53.7 $\pm$ 2.6	50.6 $\pm$ 0.5
22	94.7 $\pm$ 3.6	105 $\pm$ 4	83.7 $\pm$ 3.7	109 $\pm$ 1	97.4 $\pm$ 6.7
24	145 $\pm$ 11	156 $\pm$ 16	117 $\pm$ 7	150 $\pm$ 3	138 $\pm$ 13
26	195 $\pm$ 8	216 $\pm$ 10	159 $\pm$ 5	210 $\pm$ 8	190 $\pm$ 8
28	241 $\pm$ 8	257 $\pm$ 24	191 $\pm$ 10	251 $\pm$ 7	222 $\pm$ 16
30	257 $\pm$ 7	282 $\pm$ 28	209 $\pm$ 15	287 $\pm$ 1	239 $\pm$ 28
32	273 $\pm$ 4	261 $\pm$ 42	189 $\pm$ 16	273 $\pm$ 9	241 $\pm$ 33
34	244 $\pm$ 5	278 $\pm$ 6	183 $\pm$ 18	275 $\pm$ 21	201 $\pm$ 22

For each beam energy, the angular dependence for the calculated cross-sections from Table 1 were fitted with a fourth-degree polynomial function. The resulting fit functions were subsequently integrated numerically over the full solid angle, considering a sphere around the irradiated target covered by the detectors. The absolute total cross-sections for each energy are shown in Table 2 and are plotted in Fig. 5. The uncertainties of the cross-sections were calculated from the standard deviations of the mean cross-sections by error propagation.

Table 2 Total cross-section values of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction calculated based on the fitted experimental cross-section values from Table 1 by integration over the full solid angle. (*) The data point at 34 MeV probably contains a contribution from the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},4\text{n})^{102}\text{Pd}$ reaction channel

Energy (MeV)	Cross-section (mb)
20	70.1 ± 7.0
22	144 ± 14
24	207 ± 36
26	285 ± 26
28	341 ± 47
30	374 ± 63
32	363 ± 83
34	347 ± 53 (*)

The excitation function of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction, shown in Fig. 5, exhibits a steady increase with beam energy and reaches its maximum at approximately 30 MeV. To the best of our knowledge, this represents the first experimental cross-section measurement of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction, and therefore no literature data are available for direct comparison. Above 30 MeV, the cross-section decreases gradually with increasing energy. However, the value determined at 34 MeV was neglected in the excitation function fit in Fig. 5, as it may contain contributions from the competing $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},4\text{n})^{102}\text{Pd}$ reaction, which sets in roughly at this energy. At this energy, the 243.96 keV and 531.97 keV lines from ^{103}Pd vanish in the γ -ray spectrum, while the 719.38 keV γ -ray line originating from ^{102}Pd may overlap with the 718.02 keV γ -ray line from ^{103}Pd , potentially leading to an overestimation of the deduced ^{103}Pd production cross-section.

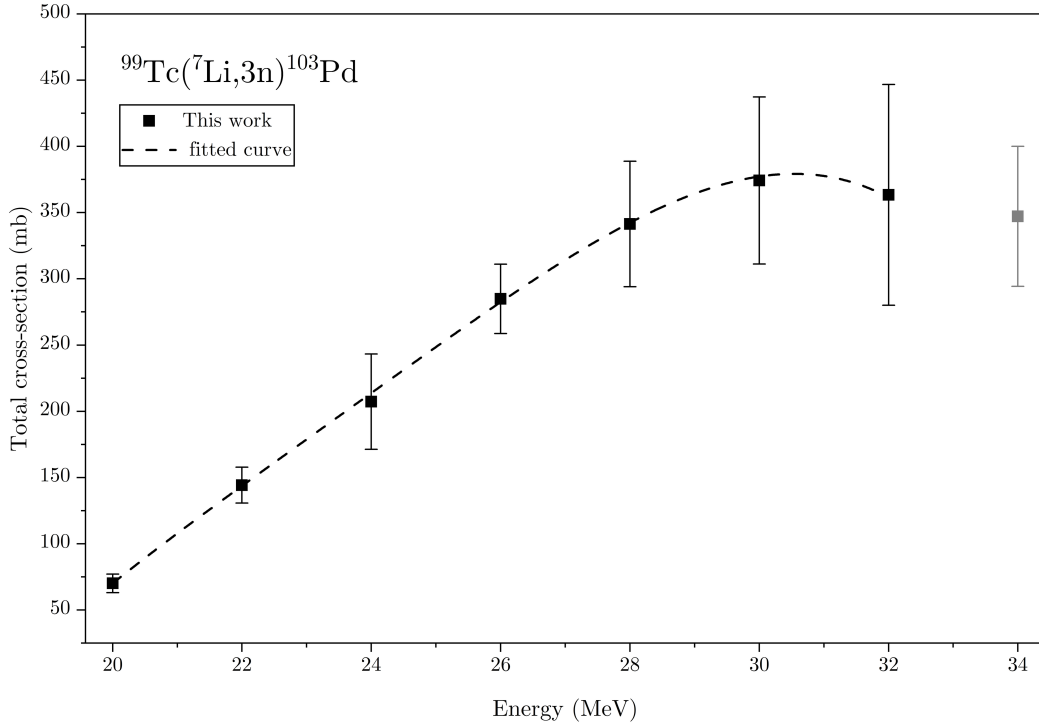


Fig. 5. Total cross-sections of $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction calculated based on the fitted experimental cross-section values by integration over the full solid angle. The $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},4\text{n})^{102}\text{Pd}$ reaction probably contributes to the cross-section value at 34 MeV (grey colour)

Conclusions

This study demonstrates that the medical radionuclide ^{103}Pd can be successfully produced by irradiating a ^{99}Tc target with $^7\text{Li}^{3+}$ ions. The formation of ^{103}Pd was quantified by in beam γ -ray spectroscopy, in which γ -rays emitted during the de-excitation of reaction product nuclei were measured simultaneously with the irradiation. The excitation function of the $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li},3\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction was determined for beam energies between 20 MeV to 32 MeV reaching a maximum at approximately 30 MeV before decreasing at higher energies. The value at 34 MeV probably contains a contribution from the $(^7\text{Li},4\text{n})$ reaction channel. In our view, the described irradiation

strategy has two advantages for the production of medical ^{103}Pd : 1) it enables to re-use ^{99}Tc from fission which otherwise must be considered waste, 2) it allows for a simple future chemical separation scheme for medical ^{103}Pd because Tc forms TcO_4^- anions from which the desired product ^{103}Pd can be separated as Pd^{2+} cations using an ion exchange column.

Acknowledgements The authors would like to thank Lars Pantenburg for his introduction to the electrochemical deposition of ^{99}Tc . They also thank Markus Müllenmeister, Svenja Wilden, Melisa Maslo and Tanja Schüttler for covering shifts in the control room during the irradiation experiments, as well as the accelerator operators for providing the beam and ensuring stable accelerator operation. Furthermore, they also thank Stefan Heinze and Martin Müller for performing the RBS measurements and Ingo Spahn for discussions and guidance throughout the project.

Author contributions A. Dragoun: Conceptualization, investigation, target preparation, data curation, visualization, writing – original draft, writing – review & editing. M. Weintert: Investigation, HORUS measurements, validation. A. Bohn: RBS measurements. B. Neumaier: Supervision. J. Ermert: Supervision, writing – review & editing. E. Strub: Investigation, RBS evaluation, validation, conceptualization, supervision, writing – review & editing.

Funding This work was carried out as part of the *99MoBest collaboration* and was financially supported by the German Federal Ministry of Research, Technology and Space (BMFTR) under grant No. 02NUK080A.

Declarations

Data availability statement The recorded gamma-ray spectra and RBS measurement data are available from the corresponding author upon reasonable request.

Conflict of interests The authors declare they have no competing interests.

References

1. Browne E, Tuli JK (2017) Nuclear Data Sheets for $A = 99$. Nucl Data Sheets 145:25-340
2. Furutaka K, Harada H, Nakamura S, Katoh T, Fujii T, Yamana H, Raman S (2005) Cross section of thermal-neutron capture reaction by ^{99}Tc . J Nucl Radiat Sci 6:283-286
3. Qaim SM (1973) Nuclear reaction cross-sections for 14.7 MeV neutrons on $^{99}\text{Tc}^*$. J Inorg Nucl Chem 35:3669-3675
4. Golchert NW, Gardner DG, Sedlet J (1965) Cross section of some reactions of ^{99}Tc with 14.1 MeV neutrons. Nucl Phys 73:349-352
5. Reimer P, Koning AJ, Plompen AJM, Qaim SM, Sudár S (2009) Neutron induced reaction cross sections for the radioactive target nucleus ^{99}Tc . Nucl Phys A 815:1-17
6. Zaitseva NG, Stegailov VI, Khalkin A, Shakun NG, Shishlyannikov, PT, Bukov KG (1996) Metal technetium target and target chemistry for the production of ^{97}Ru via the $^{99}\text{Tc}(p,3n)^{97}\text{Ru}$ reaction. Appl Radiat Isot 47:145-151
7. Titarenko YE, Batyaev VF, Karpikhin EI, Mulambetov RD, Koldobsky AB, Zhivum VM, Mulambetova SV, Lipatov KA, Nekrasov YA, Belkin AV, Alexeev NN, Schegolev VA, Goryachev YM, Luk'yashin VE, Firsov EN (2003) Experimental and theoretical study of the yields of residual product nuclei produced in thin

- targets irradiated by 100-2600 MeV protons. Final Project Technical Report of ISTC 839B-99 edn. International Nuclear Data Committee (INDC), International Atomic Energy Agency (IAEA)
8. Butler WM, Merrick GS (2016) Focal prostate brachytherapy with ^{103}Pd seeds. *Phys Med* 32:459-464
 9. Balasko JC, Grimm PD, Sylvester JE, Badiozamani KR, Hoak D, Cavanagh W (2000) Palladium-103 brachytherapy for prostate carcinoma. *Int J Radiat Oncol Biol Phys* 46:839-850
 10. Hindié F, Larouze A, Alcocer-Ávila M, Clément M, Champion C (2024) Palladium-103 ($^{103}\text{Pd}/^{103\text{m}}\text{Rh}$), a promising Auger-electron emitter for targeted radionuclide therapy of disseminated tumor cells – absorbed doses in single cells and clusters, with comparison to ^{177}Lu and ^{161}Tb . *Theranostics* 14:4318-4330
 11. Fassbender M, Nortier FM, Schroeder IW, Van der Walt TN (1999) The production of ^{103}Pd via the $^{\text{nat}}\text{Ag}(\text{p},\text{x})^{103}\text{Pd}$ nuclear process. *Radiochim. Acta* 87:87-91
 12. Uddin MS, Baba M, Hagiwara M, Latif SKA, Qaim SM (2008) Excitation functions for the formation of some short-lived products in proton-induced reactions on silver. *Radiochim Acta* 96:67-72
 13. Katcoff S, Fickel HR, Wyttenbach A (1968) Distribution of radionuclides from interaction of 3- and 29-GeV protons with silver. *Phys Rev* 166:1147-1155
 14. Sudár S, Cserpák F, Qaim SM (2002) Measurements and nuclear model calculations on proton-induced reactions on ^{103}Rh up to 40 MeV: evaluation of the excitation function of the $^{103}\text{Rh}(\text{p},\text{n})^{103}\text{Pd}$ reaction relevant to the production of the therapeutic radionuclide ^{103}Pd . *Appl Radiat Isot* 56:821-831
 15. Hermanne A, Sonck M, Fenyvesi A, Daraban L (2000) Study on production of ^{103}Pd and characterisation of possible contaminants in the proton irradiation of ^{103}Rh up to 28 MeV. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 170:281-292

16. Hussain M, Sudar S, Aslam MN, Shah HA, Ahmad R, Malik AA, Qaim SM (2009) A comprehensive evaluation of charged-particle data for production of the therapeutic radionuclide ^{103}Pd . *Appl Radiat Isot* 67:1842-1854
17. Heim F, Mayer J, Müller M, Scholz P, Weinert M, Zilges A (2020) Experimental techniques to study the γ process for nuclear astrophysics at the Cologne accelerator laboratory. *Nucl Instrum Methods Phys Res A* 966:163854
18. Netterdon L, Derya V, Endres J, Fransen C, Henning A, Mayer J, Müller-Gatermann C, Sauerwein A, Scholz B, Spieker M, Zilges A (2014) The γ -ray spectrometer HORUS and its applications for nuclear astrophysics. *Nucl. Instrum Methods Phys Res A* 754:94-100
19. Voltz E, Holt ML (1967) Electrodeposition of Tc^{99} from aqueous solution. *J Electrochem Soc* 114:128-131
20. Mayer M SIMNRA, a Simulation Program for the Analysis of NRA, RBS and ERDA. *AIP Conf Proc* 475:541-544
21. De Frenne D (2009) Nuclear Data Sheets for $A = 103$. *Nucl Data Sheets* 110:2081-2256

3 Weitere Arbeiten: Chemische Trennungen

3.1 Einleitung

In diesem Kapitel werden die chemischen Trennungen der Radionuklide $^{93\text{m}}\text{Mo}$ bzw. $^{93\text{g}}\text{Mo}$ vom Niob-Targetmaterial sowie die von ^{90}Nb vom Zirkonium-Targetmaterial beschrieben. Ursprünglich sollten zusätzlich zu den Wirkungsquerschnitten der $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion auch die der $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{g}}\text{Mo}$ -Reaktion bestimmt werden. Da $^{93\text{g}}\text{Mo}$ beim Zerfall niederenergetische Gammastrahlung mit sehr geringer Intensität emittiert (siehe Zerfallsschema in Kapitel 1.2.1), eignet sich Gammaspektroskopie nicht zur Identifizierung und Aktivitätsbestimmung. Eine bereits in der Literatur beschriebene Möglichkeit, die Aktivität von $^{93\text{g}}\text{Mo}$ über die emittierten Konversionselektronen bzw. Auger-Elektronen zu bestimmen, ist die Aufnahme eines LSC-Spektrums [10-12]. Dies erfordert eine möglichst vollständige Abtrennung des Zerfallsprodukts $^{93\text{m}}\text{Nb}$, welches im LSC-Spektrum mit dem Signal von $^{93\text{g}}\text{Mo}$ interferiert [12]. Aus diesem Grund wurde ein chemischer Trennungsgang basierend auf den Arbeiten von Osváth et al. [10] und Kajan et al. [11] durchgeführt. Wie sich jedoch im Verlauf der Arbeit herausstellte, ist die in einem angemessenen Zeitrahmen am Zyklotron erzeugte Aktivität von $^{93\text{g}}\text{Mo}$ zu gering und die Verluste an Molybdän während des Trennungsganges zu hoch, um die Wirkungsquerschnitte mit ausreichender Genauigkeit zu bestimmen. Dennoch eignet sich der neu entwickelte Trennungsgang zur Herstellung einer $^{93\text{g}}\text{Mo}$ -Lösung, die als Standard in der AMS eingesetzt werden kann. In den Experimenten zur Entwicklung des Trennungsganges wurden frisch bestrahlte Niobfolien verwendet der Verlust an Molybdän durch die Entnahme von Aliquoten und Bestimmung der $^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Aktivität zum EOB-Zeitpunkt (end of bombardment) bestimmt. Zur Überprüfung der Abtrennung von Niob aus der Molybdänfraktion, wurde zu Beginn der Trennung ^{90}Nb als Tracernuklid zugegeben und nach Abschluss der Aufarbeitung auf verbleibende Aktivität untersucht. ^{90}Nb wurde als Tracernuklid

ausgewählt, da es hochenergetische und intensive Gammastrahlung emittiert und somit leicht detektierbar ist. Darüber hinaus kann es am Zyklotron durch die Bestrahlung von natürlichem Zirkonium durch die $^{90}\text{Zr}(\text{p},\text{n})^{90}\text{Nb}$ -Reaktion erzeugt werden kann. Natürliches Zirkonium besteht zu 51,45 % aus dem Isotop ^{90}Zr [49]. Die Abtrennung von ^{90}Nb vom Zirkonium Targetmaterial wurde in Anlehnung an die Arbeit von Kajan et al. [11] (Supporting Information von [11]) durchgeführt. Dort wurde ein $^{95}\text{Nb}/^{95}\text{Zr}$ -Generator aus mit Neutronen bestrahltem Zirkonium verwendet und ^{95}Nb eluiert. Für die Herstellung des $^{93\text{g}}\text{Mo}$ -AMS-Standards wurde gewartet bis das $^{93\text{m}}\text{Mo}$ der bestrahlten Niobfolie komplett zerfallen war, um kein $^{93\text{m}}\text{Nb}$ nachzubilden. Diese Trennung erfolgte ohne die Zugabe des ^{90}Nb -Tracers.

3.2 Experimenteller Teil

Eingesetzte Chemikalien und Materialien

Aluminium (Folie 0,050 mm dick, 99,999 %, Goodfellow, Deutschland), Aluminium (Folie 0,25 mm dick, 99,0 %, Goodfellow, Deutschland), Aluminiumoxid (90 aktiv neutral, Aktivitätsstufe I, für die Säulenchromatographie, Merck, Deutschland), Ammoniaklösung (25 %, AnalaR NORMAPUR, VWR, Deutschland), Eisen(III)-chlorid (97 %, Aldrich, DE), Flusssäure (48 %, ARISTAR[®], for trace analysis, VWR, Deutschland), Niob (Folie 0,0075 mm dick, 99,9 %, Goodfellow, Deutschland), Salpetersäure (65-70 %, 99,9999 % (metals basis), Thermo Scientific, Deutschland), Salzsäure (37 %, ISO, Ph.Eur., ACS, trace analysis, Chem-Lab, Belgien), TEVA-Resin (Partikelgröße 50 bis 100 μm , Triskem International, Frankreich), Zirkonium (Folie 0,025 mm dick, 99,9 %+ (metals basis), Thermo Fisher Scientific, Deutschland).

Die 6,5M HCl/0,1 M HF-Lösung wurde aus den oben angegebenen konzentrierten Säuren und VE-Wasser angesetzt.

Eingesetzte Geräte

Zentrifuge (Biofuge Primo, Heraeus Instruments, DE), Gammadetektor (GEM-20190, Ortec, USA).

3.2.1 Produktion von ^{90}Nb und chemische Trennung vom Zirkonium-Targetmaterial

Am experimentellen Bestrahlungsrohr des IBA Cyclone 30 XP-Zyklotrons am Institut für Neurowissenschaften und Medizin – Nuklearchemie (INM-5) am Forschungszentrum Jülich wurde ein Targetstack bestehend aus Aluminiumfolien als Energieschwächer ($\varnothing$ 13 mm, 0,25 mm dick) und einer Zirkoniumfolie (ca. 24 mg, $\varnothing$ 13 mm, 0,025 mm dick) mit 15 MeV Protonen und einem Strahlstrom von 3 μA für eine Stunde bestrahlt ($^{90}\text{Zr}(\text{p},\text{n})^{90}\text{Nb}$ -Reaktion). Die Protonenenergie auf der Zirkoniumfolie betrug rund 11,3 MeV. Nach der Bestrahlung wurde die ^{90}Nb -Aktivität der Zirkoniumfolie durch Gammaspektroskopie bestimmt. Anschließend wurde die Zirkoniumfolie in 1 mL 48%iger Flußsäure aufgelöst und dann bei 250 °C in einem Teflonbecher eingedampft. Der Rückstand wurde in 1 mL einer 7 M HCl/1 M HF-Lösung aufgenommen und die ^{90}Nb -Aktivität bestimmt. Diese $^{90}\text{Nb}/\text{Zr}$ -Lösung wurde auf eine Trennsäule mit TEVA-Resin (100 mg) aufgetragen, die zuvor mit 7 M HCl/1 M HF-Lösung konditioniert wurde. Es wurde zunächst zweimal mit je 1 mL 7 M HCl/1 M HF-Lösung eluiert (Zr-Fraktion), dann sechsmal mit je 6,5 M HCl/0,1 M HF-Lösung (^{90}Nb -Fraktion). Alle Eluate wurden gammaspektroskopisch untersucht. Die ^{90}Nb -Fraktionen wurden anschließend zu einer Lösung vereinigt, eingedampft und in 1 mL 6,5 M HCl/0,1 M HF-Lösung aufgenommen.

3.2.2 Produktion von ^{93m}Mo und chemische Trennung vom Niob-Targetmaterial

Am experimentellen Bestrahlungsrohr des IBA Cyclone 30 XP-Zyklotrons am Institut für Neurowissenschaften und Medizin – Nuklearchemie (INM-5) am Forschungszentrum Jülich wurde ein Targetstack bestehend aus Aluminiumfolien als Energieschwächer ($\varnothing$ 13 mm, 0,050 mm und 0,25 mm dick) und zwei Niobfolien (je ca. 9 mg, $\varnothing$ 13 mm, 0,0075 mm dick) mit 15 MeV Protonen und einem Strahlstrom von $3\text{ }\mu\text{A}$ für eine Stunde bestrahlt ($^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93m}\text{Mo}$ -Reaktion). Die Protonenenergie auf den Niobfolien betrug rund 12,9 MeV und 12,5 MeV (im Bereich des Maximums der Anregungsfunktion). Nach der Bestrahlung wurde die ^{93m}Mo -Aktivität der Niobfolien durch Gammaspektroskopie bestimmt. Anschließend wurde eine Niobfolie in 0,75 mL 48%iger Flusssäure unter Zugabe von zwei Tropfen konzentrierter Salpetersäure in einem Eppendorfgefäß aufgelöst und 0,25 mL ^{90}Nb -Tracer ($\sim 1,3\text{ MBq}$, gelöst in 6,5 M HCl/0,1 M HF) zugegeben. Die ^{93m}Mo - und ^{90}Nb -Aktivität wurde mittels Gammaspektroskopie bestimmt. Die Lösung wurde in einen Teflonbecher überführt und bei $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ eingedampft. Nach Zugabe von 0,5 mL 48%iger Flusssäure wurde erneut eingedampft und der Rückstand unter leichtem Erwärmen in 2,5 mL 6 M Flusssäure aufgenommen. Nach Umfüllen der Lösung in ein 50 mL-Zentrifugenröhrchen aus Kunststoff, wurde mit VE-Wasser auf ein Volumen von 15 mL verdünnt und durch Zugabe von 5 mL 20%iger wässriger Ammoniaklösung Nb_2O_5 ausgefällt. Nach dem Schütteln und Zentrifugieren für vier Minuten bei 3.000 Umdrehungen wurde die überstehende Lösung in ein neues 50 mL-Zentrifugenröhrchen aus Kunststoff abpipettiert und mit 2,5 mL FeCl_3 -Lösung (mit 16 mg Fe pro Milliliter Lösung) versetzt um $\text{Fe}(\text{OH})_3$ auszufällen. Die überstehende Lösung wurde nach dem Schütteln und Zentrifugieren für vier Minuten bei 3.000 Umdrehungen in einen Teflonbecher überführt, mit 1 mL 37%iger Salzsäure und 1 mL 70%iger Salpetersäure versetzt und bei 250°C auf der Heizplatte eingedampft. Um den Eindampfprozess zu beschleunigen, wurde der Teflonbecher mit Aluminiumfolie umhüllt und zusätzlich mithilfe eines Heißluftgebläses seitlich erwärmt. Der Rückstand wurde zweimal mit je 1 mL 37%iger

Salzsäure und 1 mL 70%iger Salpetersäure versetzt und anschließend bis zur Trockene eingedampft. Danach erfolgte die dreimalige Zugabe von je 1 ml 48%iger Flusssäure mit anschließendem erneutem Eindampfen. Der erhaltene Rückstand wurde in 2,5 mL 0,1 M Flusssäure und 2,5 mL VE-Wasser aufgenommen und auf eine Al₂O₃-Säule (2 g, konditioniert mit 5 mL 0,05 M Flusssäure) aufgetragen. Anschließend wurde die Säule mit 5 mL 0,05 M Flusssäure und dann mit 5 mL VE-Wasser gespült. Die Molybdänfraktion wurde anschließend mit 5 mL 6,7 M Ammoniaklösung eluiert. Ein Aliquot dieser Lösung wurde entnommen und gammaspektroskopisch untersucht.

Für die Herstellung einer ^{93g}Mo-Lösung für die AMS wurde der gleiche Trennungsgang angewendet. Im Gegensatz zu den vorherigen Experimenten wurde hierfür jedoch ein bestrahltes Niobtarget eingesetzt, dessen ^{93m}Mo-Aktivität bereits vollständig abgeklungen war, um die Neubildung von ^{93m}Nb und die damit verbundene Beeinflussung der AMS- und eventuellen LSC-Messungen von ^{93g}Mo zu vermeiden. Darüber hinaus wurde auf die Zugabe von ⁹⁰Nb-Tracer verzichtet. Das Molybdäneluat der Aluminiumoxid-Säule wurde eingedampft und in 2 mL VE-Wasser aufgenommen, wodurch die AMS-Standardlösung erhalten wurde. Eine analytische Charakterisierung dieser Lösung war nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit.

3.3 Ergebnisse der chemischen Trennungen

In Abbildung 6 ist das Gammaspektrum der protonenbestrahlten Zirkoniumfolie ($^{90}\text{Zr}(\text{p},\text{n})^{90}\text{Nb}$ -Reaktion) dargestellt. Die charakteristischen Gammalinien von ^{90}Nb bei 132 keV, 141 keV, 1129 keV und 1611 keV sind entsprechend markiert. Die Gammalinie bei 934 keV lässt sich möglicherweise dem Radionuklid $^{92\text{m}}\text{Nb}$ zuordnen (HWZ: 10.15 d), welches als Nebenprodukt gebildet worden sein könnte. Die bei 511 keV beobachtete Annihilationslinie resultiert aus dem β^+ -Zerfall von ^{90}Nb . Für die Aktivitätsbestimmung wurde die Gammalinie bei 1129 keV verwendet. Bei der Bestrahlung des Targetstacks mit 15 MeV Protonen, einem Strahlstrom von 3 μA und einer Bestrahlungsdauer von einer Stunde wurden auf der Zirkoniumfolie ^{90}Nb -Aktivitäten (EOB) im Bereich von 27 bis 29 MBq erhalten.

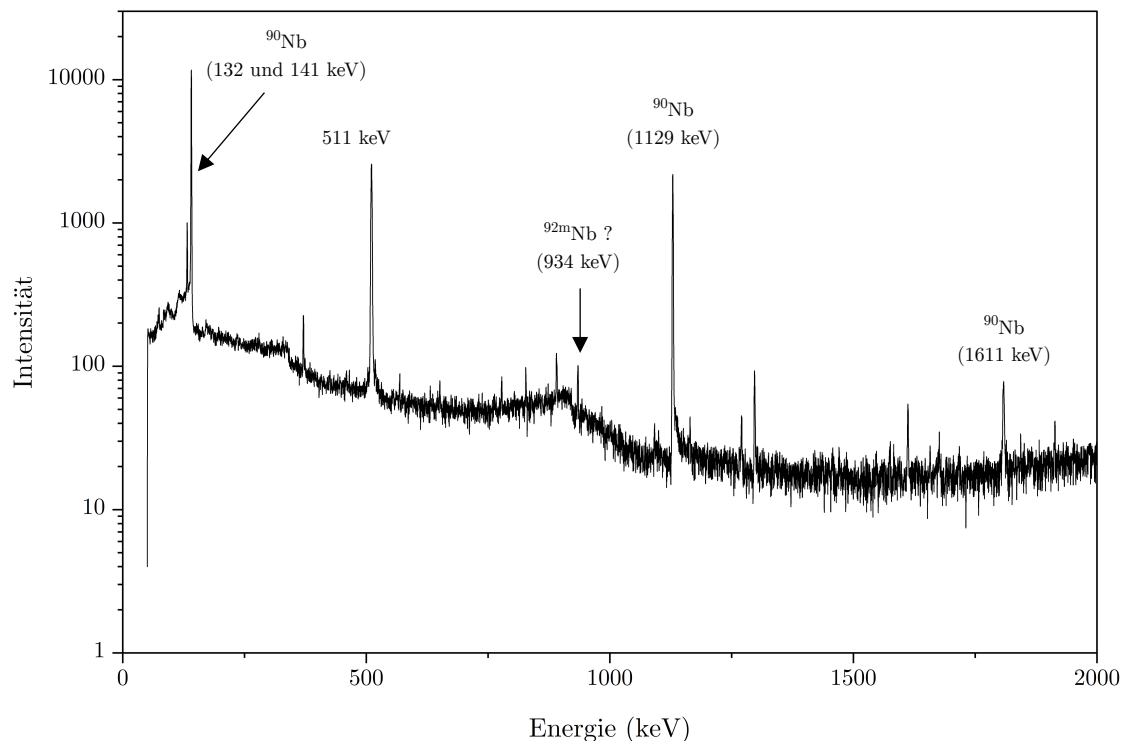


Abbildung 6 Gammaspektrum einer mit Protonen (Strahlstrom 3 μA , Bestrahlungsdauer eine Stunde) bestrahlten Zirkoniumfolie (HPGe-Detektor, Messzeit 50 s). Die Energie der Protonen auf der Zirkoniumfolie betrug ca. 11,3 MeV.

Abbildung 7 zeigt einen Targetstack sowie eine Targethalterung aus Kupfer, die üblicherweise für die Bestrahlung von Targetstacks an dem experimentellen Bestrahlungsrohr des Zyklotrons verwendet wird.



Abbildung 7 Beispiel eines Targetstacks. Targethalterung aus Kupfer mit Metallfolien für die Bestrahlung am experimentellen Bestrahlungsrohr des Zyklotrons. Die Targetfolien werden auf dem Sockel (links) gestapelt und durch die oben offene Ringmutter (rechts) zusammengepresst. Die Bestrahlung erfolgt von der oberen Seite.

Das Gammaspektrum der protonenbestrahlten Niobfolie ist in Abbildung 8 gezeigt. Die Gammalinien bei 263 keV, 685 keV und 1477 keV stammen von $^{93\text{m}}\text{Mo}$ und wurden für die Aktivitätsbestimmungen verwendet. Bei den Bestrahlungen (15 MeV Protonen, Strahlstrom von 3 μA , Bestrahlungsdauer 1 Stunde, $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion) wurden pro Niobfolie typischerweise $^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Aktivitäten (EOB) im Bereich von ca. 1 bis 1,6 MBq erzeugt.

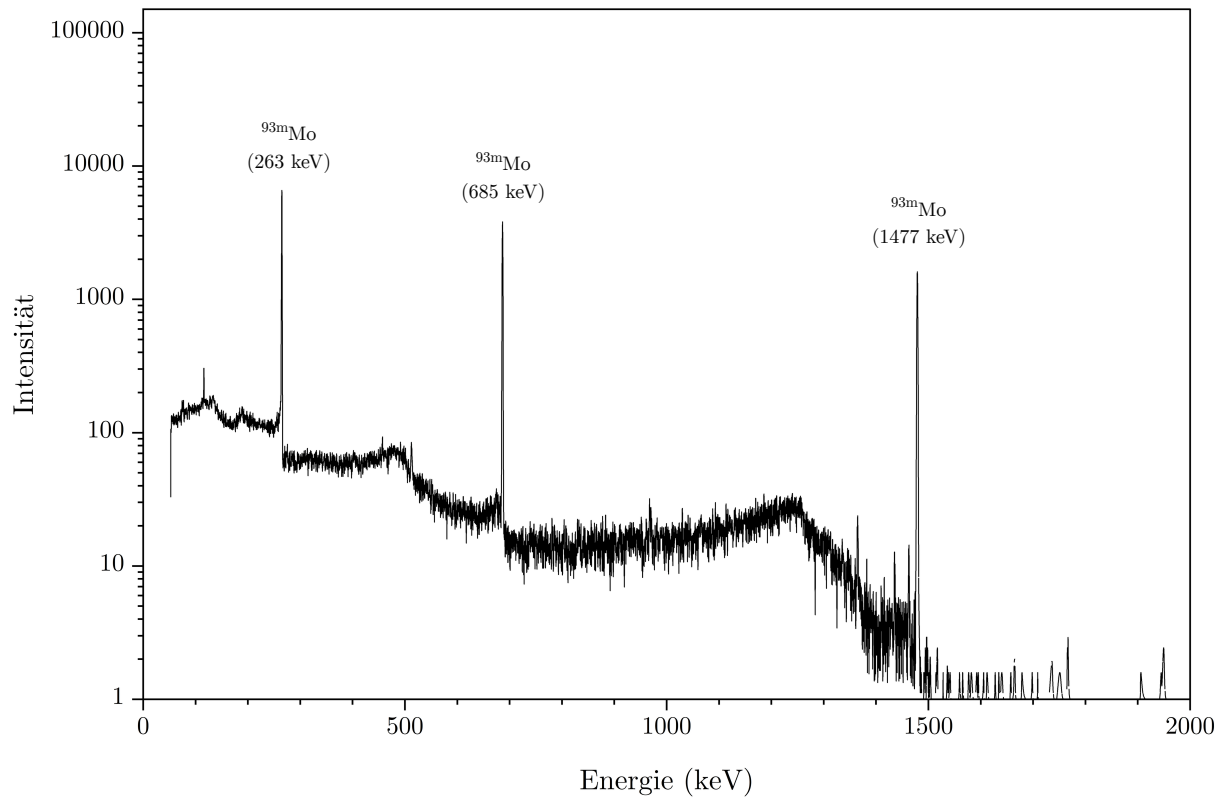


Abbildung 8 Gammaspektrum einer mit Protonen (Strahlstrom $3\ \mu\text{A}$, Bestrahlungsdauer von eine Stunde) bestrahlten Niobfolie (HPGe-Detektor, Messzeit 505 s). Die Energie der Protonen auf der Nb-Folie betrug ca. 12,9 MeV.

Das Gammaspektrum des aufgelösten Niobtargets nach Zugabe des ^{90}Nb -Tracers ist in Abbildung 9 angegeben. Für die Bestimmung der Aktivitäten der flüssigen Proben wurde der Geometriefaktor der Messanordnung berücksichtigt.

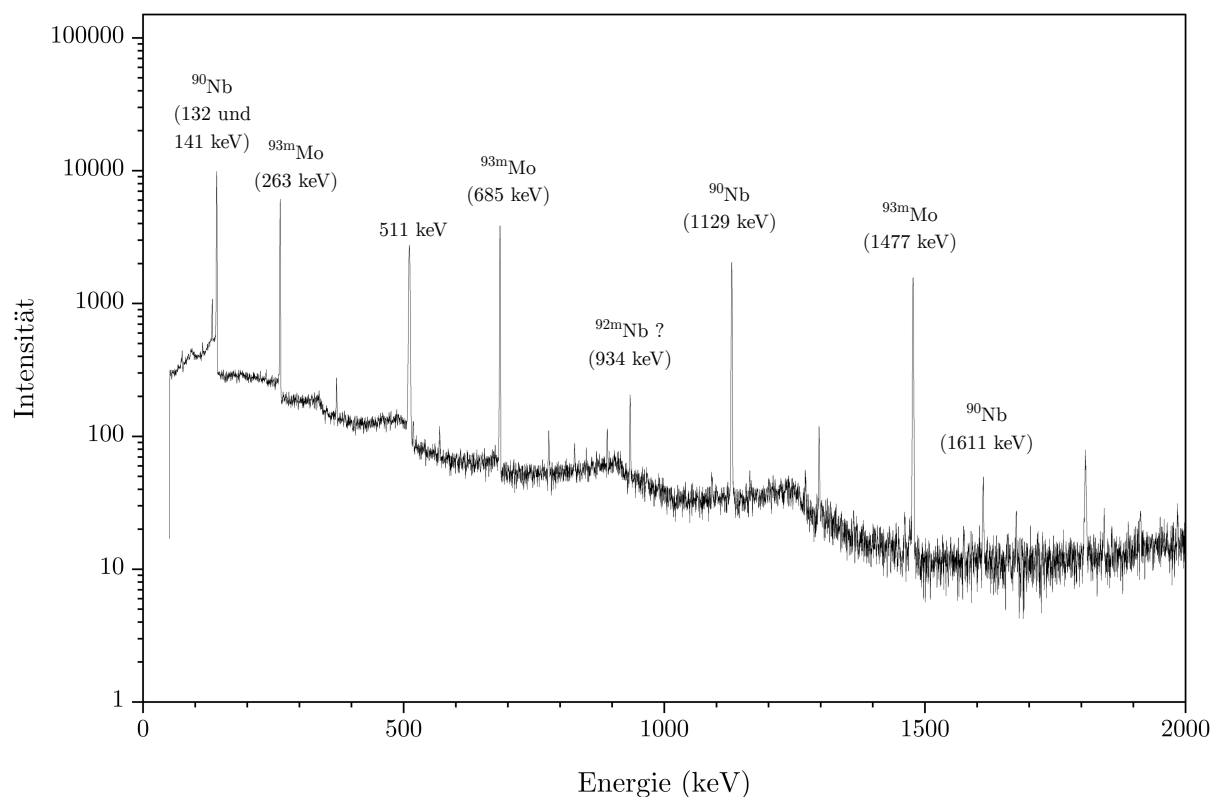


Abbildung 9 Gammaspektrum des bestrahlten und aufgelösten Niobtargets mit dem zugegebenen ^{90}Nb -Tracer (HPGe-Detektor, Messzeit 760 s).

Mit dem Trennungsgang, der als Schema in Abbildung 10 als Übersicht gezeigt ist, wurde am Ende eine Molybdänlösung erhalten, die rund 30 % der eingesetzten ^{93m}Mo -Aktivität (bezogen auf die Targetlösung und EOB) enthält. Das Gammaspektrum des Molybdäneluats ist in Abbildung 11 dargestellt. Die fehlenden Gammalinien von ^{90}Nb bei 1129 keV und 1611 keV deuten darauf hin, dass Niob mit dem angewandten Trennungsgang erfolgreich vom ^{93m}Mo abgetrennt wurde.

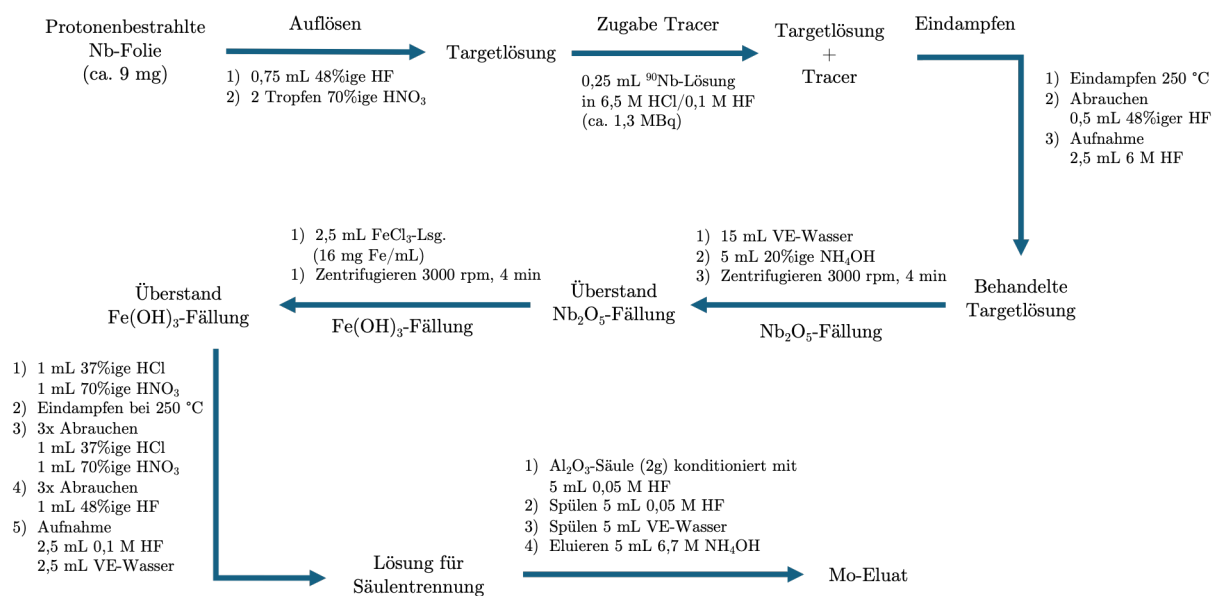


Abbildung 10 Schema der chemischen Trennung von ^{93}Mo vom Niob-Targetmaterial als Übersicht.

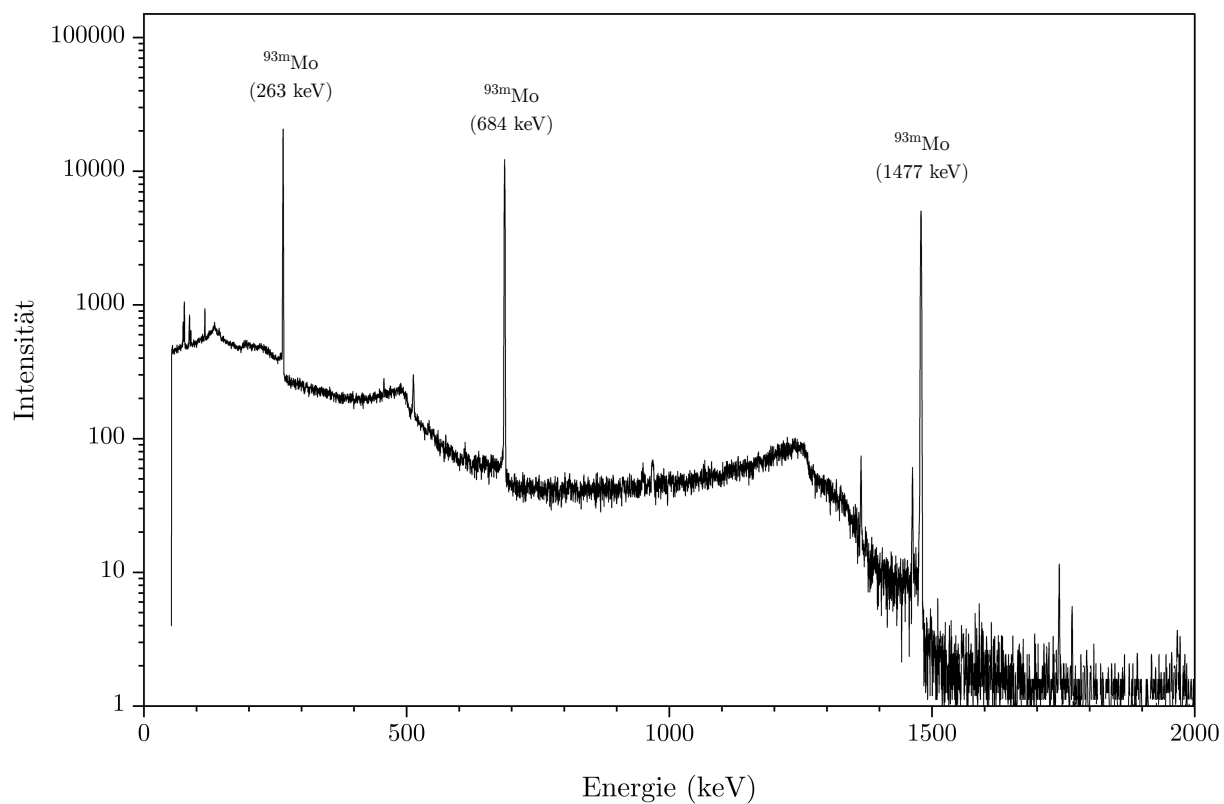


Abbildung 11 Gammaspektrum des Molybdäneluats (1 mL Aliquot) der Al_2O_3 -Säulentrennung (HPGe-Detektor, Messzeit 2070 s). Gammalinien von ^{90}Nb sind nicht erkennbar.

4 Zusammenfassung und Diskussion

In dieser Arbeit wurden die Wirkungsquerschnitte von Kernreaktionen mit geladenen Teilchen ($^1\text{H}^+$, $^4\text{He}^{2+}$, $^7\text{Li}^{3+}$) auf Zirkonium, Niob und Technetium experimentell bestimmt. Durch die $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ - und $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,\text{x})^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ -Reaktionen kann das Radionuklid $^{93\text{m}}\text{Mo}$ erhalten werden, welches als Tracernuklid in Trennungsexperimenten für die Optimierung des LSA- $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Generators eingesetzt werden kann. Die $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,\text{x})^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ -Reaktionen liefern neben $^{93\text{m}}\text{Mo}$ durch die $^{96}\text{Zr}(\alpha,\text{n})^{99}\text{Mo}$ -Reaktionen auch ^{99}Mo . Durch Abtrennung von $^{93\text{m}}\text{Mo}$ und ^{99}Mo vom Zirkonium-Targetmaterial und Hinzufügen von $^{\text{nat}}\text{Mo}$, kann ^{99}Mo mit niedriger spezifischer Aktivität für die Generatorexperimente erhalten werden. Sowohl die $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion als auch die $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,\text{x})^{93\text{m}/99}\text{Mo}$ -Reaktionen wurden in der Literatur bereits beschrieben. Da deren Wirkungsquerschnitte teilweise erhebliche Unsicherheiten aufweisen oder für bestimmte Energiebereiche keine Messwerte vorliegen, wurden im Rahmen dieser Arbeit neue Messungen durchgeführt. Die experimentellen Wirkungsquerschnitte der $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion wurden durch Protonenbestrahlung von Niobfolie in Targetstacks am Zyklotron (JSW Baby Cyclotron BC 1719, INM-5/FZJ) bis zu einer Protonenenergie von 17 MeV bestimmt. Durch die $^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})^{62/63}\text{Zn}$ -Monitorreaktionen wurde die Protonenenergie und der Protonenfluss bestimmt. Die Wirkungsquerschnitte wurden mit Literaturwerten sowie theoretischen TALYS-Berechnungen und TENDL-2023-Daten verglichen. Es konnte gezeigt werden, dass die neu gemessenen Werte mit den meisten Literaturwerten sowie den TALYS-Berechnungen übereinstimmen, wohingegen die TENDL-2023-Daten Abweichungen zeigen. Durch Berechnung der integralen Ausbeute konnte außerdem gezeigt werden, dass durch die $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Reaktion eine ausreichend hohe $^{93\text{m}}\text{Mo}$ -Aktivität für die Trennungsexperimente erzeugt werden kann. Bei der Protonenbestrahlung von Niob wird neben dem metastabilen Zustand $^{93\text{m}}\text{Mo}$ auch gleichzeitig der Grundzustand $^{93\text{g}}\text{Mo}$ durch die $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{g}}\text{Mo}$ -Reaktion gebildet. Die

Wirkungsquerschnitte dieser Reaktion sollten im weiteren Verlauf der Arbeit ebenfalls bestimmt werden. Bedingt durch die Zerfalleigenschaften des ^{93g}Mo und dessen Tochternuklid ^{93m}Nb , ist für die Messung der ^{93g}Mo -Aktivität eine vollständige chemische Abtrennung von Niob erforderlich. Dazu wurde basierend auf Literaturarbeiten ein Trennungsgang für Molybdän und Niob erarbeitet, der in den Entwicklungsexperimenten ^{93m}Mo und ^{90}Nb als Tracernuklid verwendet. ^{90}Nb wurde durch Protonenbestrahlung von Zirkoniumfolie am Zyklotron durch die $^{90}\text{Zr}(p,n)^{90}\text{Nb}$ -Reaktion hergestellt und vom Targetmaterial chemisch abgetrennt. Der Verlauf der Trennung von Molybdän und Niob wurde mittels Gammaspektroskopie untersucht. Durch die Analyse der Gammalinien von ^{90}Nb und ^{93m}Mo in den Gammaspektren konnte die vollständige Abtrennung von Niob und Molybdän abgeleitet werden. Am Ende der Trennung konnte ca. 30 % der eingesetzten ^{93m}Mo -Aktivität (EOB) erhalten werden. Wie sich jedoch durch Berechnungen herausstellte, ist es nicht möglich, durch die Bestrahlung am Zyklotron in einem angemessenen Zeitrahmen genügend ^{93g}Mo -Aktivität zu erzeugen, um die Wirkungsquerschnitte experimentell zu bestimmen. Dennoch konnte der Trennungsgang dazu verwendet werden, um eine ^{93g}Mo -Lösung aus einem mit Protonen bestrahlten Niobtarget herzustellen, dessen ^{93m}Mo -Aktivität bereits abgeklungen war. Diese Lösung soll als Standard in der AMS eingesetzt werden. Die Wirkungsquerschnitte der $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,x)^{93m/99}\text{Mo}$ -Reaktionen bzw. der $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,x)^{93m}\text{Mo}$ - und $^{96}\text{Zr}(\alpha,n)^{99}\text{Mo}$ -Reaktionen, wurden durch Bestrahlung von Folien aus natürlichem Zirkonium in Targetstacks am Zyklotron (IBA Cyclone 30 XP, INM-5/FZJ) bis zu einer Alphapartikelenergie von 30 MeV experimentell bestimmt. Die Eingangsenergie der Alphapartikel und der Partikelfluss wurden durch die $^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha,x)^{66/67}\text{Ga}$ -Monitorreaktionen bestimmt. Die neu gemessenen Wirkungsquerschnitte wurden mit Literaturwerten sowie mit theoretischen TALYS-Berechnungen und TENDL-2025-Daten verglichen. Für die $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha,x)^{93m}\text{Mo}$ -Reaktion konnten im Bereich um 20 MeV neue Wirkungsquerschnitte hinzugefügt werden. Die neuen Werte folgen dem allgemeinen Trend der meisten Literaturwerte, wobei einige Literaturwerte erhebliche

Abweichungen zeigen. Theoretische TALYS-Berechnungen und TENDL-2025-Daten zeigen gute Übereinstimmung mit Bereich kleiner Energien und große Abweichungen bei höheren Energien. Die Wirkungsquerschnitte der $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ -Reaktion zeigen gute Übereinstimmung mit den meisten Literaturwerten und erlauben eine genauere Identifizierung des Maximums der Anregungsfunktion. Sowohl theoretische TALYS-Berechnungen als auch die TENDL-2025-Daten folgen bei geringen Energien dem Verlauf der experimentellen Werte, unterschätzen aber das Maximum der Anregungsfunktion deutlich um sich bei höheren Energien wieder den Literaturwerten anzunähern. Die integralen Ausbeuten der $^{\text{nat}}\text{Zr}(\alpha, x)^{93\text{m}}\text{Mo}$ - und $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ -Reaktion wurden berechnet. Es zeigte sich eine gute Übereinstimmung mit der Literatur. Auch hier konnte nachgewiesen werden, dass diese Reaktionen ausreichend Aktivitäten für $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Trennungsexperimente erzeugen.

Im weiteren Verlauf der Arbeit wurde das medizinisch genutzte Radionuklid ^{103}Pd erstmals durch die Bestrahlung von ^{99}Tc mit ^7Li erzeugt und die Wirkungsquerschnitte der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li}, 3n)^{103}\text{Pd}$ -Reaktion im Energiebereich von 20 bis 34 MeV gemessen. Das ^{99}Tc -Target wurde durch Elektrolyse einer Ammoniumpertechnetat-Lösung auf Goldfolie hergestellt. Die Menge des abgeschiedenen ^{99}Tc wurde mittels RBS-Messungen ermittelt. Das $^{99}\text{Tc}/\text{Au}$ -Target wurde am 10 MV FN-Tandem-Beschleuniger am Institut für Kernphysik (Universität zu Köln) mit $^7\text{Li}^{3+}$ -Ionen bestrahlt. Durch Messung von prompter Gammastrahlung, die von angeregten ^{103}Pd -Kernen während der Bestrahlung emittiert wird, wurde die Anzahl der produzierten ^{103}Pd -Kerne bestimmt. Die daraus berechnete Anregungsfunktion zeigt ein Maximum bei 30 MeV. Der Wirkungsquerschnitt bei 34 MeV steigt wieder leicht an, vermutlich durch einen Beitrag der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li}, 4n)^{102}\text{Pd}$ -Reaktion. Die $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li}, 3n)^{103}\text{Pd}$ -Reaktion stellt eine alternative Herstellungsmethode für ^{103}Pd dar, welches bisher meist über die etablierte $^{\text{nat}}\text{Ag}(p, x)^{103}\text{Pd}$ - oder $^{103}\text{Rh}(p, n)^{103}\text{Pd}$ -Reaktion hergestellt wurde. Ein Vorteil der $^{99}\text{Tc}(^7\text{Li}, 3n)^{103}\text{Pd}$ -Reaktion ist die einfachere chemische Abtrennung von ^{103}Pd vom Tc-Targetmaterial als von Ag- oder Rh-Targetmaterial über einen Ionenaustauscher. Ein

großer Nachteil dieser Herstellungsmethode ist aber die eingeschränkte Verfügbarkeit von Beschleunigern, die einen ${}^7\text{Li}^{3+}$ -Ionenstrahl zusammen mit einem hohen Strahlstrom bereitstellen können.

5 Literaturverzeichnis

1. Bartholomä MD, Louie AS, Valliant JF, Zubieta J (2010) Technetium and gallium derived radiopharmaceuticals: comparing and contrasting the chemistry of two important radiometals for the molecular imaging era. *Chem Rev* 110:2903–2920
2. Nawar MF, Türler A (2022) New strategies for a sustainable ^{99m}Tc supply to meet increasing medical demands: promising solutions for current problems. *Front Chem* 10:926258
3. Bockisch A, Grünwald F, Kotzerke J (2009) Radionuklidengpass - Ursachen und Lehren. *Nuklearmedizin* 48(2):55–57
4. Osso Jr. JA, Catanoso MF, Barrio G, Brambilla TP, Teodoro R, Dias CRBR, Suzuki KN (2012) Technetium-99m - new production and processing strategies to provide adequate levels for SPECT imaging. *Curr Pharm* 5:178–186
5. Lewis DM (2009) ^{99}Mo supply - the times they are a-changing. *Eur J Nucl Med Mol Imaging* 36:1371–1374
6. Pillai MRA, Dash A, Knapp Jr. FFR (2013) Sustained availability of ^{99m}Tc : possible paths forward. *J Nucl Med* 54:313–323
7. Gutberlet T, Rücker U, Mauerhofer E, Zakalek P, Cronert T, Voigt J, Baggemann J, Li J, Doege P, Böhm S, Rimmler M, Felden O, Gebel R, Meusel O, Podlech H, Barth W, Brückel T (2020) Sustainable neutrons for today and tomorrow - the Jülich high brilliance neutron source project. *Neutron News* 31(2-4):37–43
8. Michel M, Sudbrock F, Neumaier B, Eberhardt K, Strub E (2025) Comparison of standard and modified $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ radionuclide generators. *J Radioanal Nucl Chem* 334:7255–7263
9. Baglin CM (2011) Nuclear Data Sheets for $A = 93$. *Nucl Data Sheets* 112:1163–1389
10. Osváth S, Qiao J, Hou X (2019) Preparation of ^{93}Mo solution using proton irradiated Nb. *J Radioanal Nucl Chem* 322:1833–1839
11. Kajan I, Heinitz S, Kossert K, Sprung P, Dressler R, Schumann D (2021) First direct determination of the ^{93}Mo half-life. *Sci Rep* 11:19788
12. Roos P (2019) Isolation and quantification of a ^{93}Mo isotope solution from proton irradiated niobium. *Talanta* 204:769–775
13. Basu SK, McCutchan EA (2020) Nuclear Data Sheets for $A = 90$. *Nucl Data Sheets* 165:1–329
14. Browne E, Tuli JK (2017) Nuclear Data Sheets for $A = 99$. *Nucl Data Sheets* 145:25–340
15. De Frenne D (2009) Nuclear Data Sheets for $A = 103$. *Nucl Data Sheets* 110:2081–2256

16. Hindié F, Larouze A, Alcocer-Ávila M, Clément M, Champion C (2024) Palladium-103 ($^{103}\text{Pd}/^{103\text{m}}\text{Rh}$), a promising Auger-electron emitter for targeted radionuclide therapy of disseminated tumor cells - absorbed doses in single cells and clusters, with comparison to ^{177}Lu and ^{161}Tb . *Theranostics* 14(11):4318–4330
17. Tang C, Sanders J, Thames H, Swanson DM, Crook JM, Bruno T, Blanchard P, Ciezki J, Keyes M, Song D, Singh T, Merrick G, Stock R, Sullivan FJ, Mok H, Millar J, Frank SJ (2023) Outcomes after Pd-103 versus I-125 for low dose rate prostate brachytherapy monotherapy: an international, multi-institutional study. *Radiother Oncol* 183:109599
18. Butler WM, Merrick GS (2016) Focal prostate brachytherapy with ^{103}Pd seeds. *Phys Med* 32(3):459–464
19. Blasko JC, Grimm PD, Sylvester JE, Badiozamani KR, Hoak D, Cavanagh W (2000) Palladium-103 brachytherapy for prostate carcinoma. *Int J Radiat Oncol Biol Phys* 46(4):839–850
20. Lieser KH (1991) Einführung in die Kernchemie. 3. edn. VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, Deutschland
21. Weinreich R, Schult O, Stöcklin G (1974) Production of ^{123}I via the $^{127}\text{I}(\text{d},6\text{n})^{123}\text{Xe}(\beta^+, \text{EC})^{123}\text{I}$ process. *Int J Appl Radiat Isot* 25:535–543
22. IAEA Monitor Reactions 2017.
https://www-nds.iaea.org/medical/monitor_reactions.html
23. Hermanne A, Ignatyuk AV, Capote R, Carlson BV, Engle JW, Kellett MA, Kibédi T, Kim G, Kondev FG, Hussain M, Lebeda O, Luca A, Nagai Y, Naik H, Nichols AL, Nortier FM, Suryanarayana SV, Takács S, Tárkányi FT, Verpelli M (2018) Reference cross sections for charged-particle monitor reactions. *Nucl Data Sheets* 148:338–382
24. Bethe HA (1940) A continuum theory of the compound nucleus. *Phys Rev* 57:1125–1144
25. Williamson CF, Boujot J-P, Picard J (1966) Tables of range and stopping power of chemical elements for charged particles of energy 0.05 to 500 MeV. Rapport CEA - R 3042, Commissariat à l’Energie Atomique, Département de Physique Nucléaire, Service de Physique Nucléaire à Basse Energie.
26. Kim K, Kim G, Shahid M, Zaman M, Yang S-C, Uddin MS, Naik H (2018) Excitation functions of $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{x})$ reactions from threshold to 42.5 MeV. *J Radioanal Nucl Chem* 317:1021–1031
27. Lawriniang B, Ghosh R, Badwar S, Vansola V, Santhi Sheela Y, Suryanarayana SV, Naik H, Naik YP, Jyrwa B (2018) Measurement of cross-sections for the $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{n})^{93\text{m}}\text{Mo}$ and $^{93}\text{Nb}(\text{p},\text{pn})^{92\text{m}}\text{Nb}$ reactions up to ~ 20 MeV energy. *Nucl Phys A* 973:79–88
28. Parashari S, Mukherjee S, Nayak BK, Makwana R, Suryanarayana SV, Naik H, Sharma SC (2018) Excitation functions of the $p + ^{93}\text{Nb}$ reaction in the energy range 10–22 MeV. *Nucl Phys A* 978:160–172

29. Rizvi IA, Kumar K, Ahmad T, Agarwal A, Chaubey AK (2012) Energy dependence of pre-equilibrium emission for the (p,xn) reactions in niobium. *Indian J Phys* 86(10):913–918
30. Ditrói F, Hermanne A, Corniani E, Takács S, Tárkányi F, Csikai J, Shubin YN (2009) Investigation of proton induced reactions on niobium at low and medium energies. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 267:3364–3374
31. Avila-Rodriguez MA, Wilson JS, Schueller MJ, McQuarrie SA (2008) Measurement of the activation cross section for the (p,xn) reactions in niobium with potential applications as monitor reactions. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 226:3353–3358
32. Levkovskij VN (1991) Act. cs. by. protons and alphas. Levkovskij, Moscow, USSR
33. Blaser J-P, Boehm F, Marmier P, Peaslee DC (1951) Fonctions d'excitation de la réaction (p,n). *Helv Phys Acta* 24(1)
34. Forsthoff CW, Gockermann RH, Naumann RA (1951) Formation and decay of $\text{Mo}^{93\text{m}}$. *Phys Rev* 90:1004–1005
35. James RA (1954) Excitation functions of proton-induced reactions of Nb^{93} . *Phys Rev* 93(2):288–290
36. Koning AJ, Rochman D, Sublet J-C, Dzysiuk N, Fleming M, Van der Marck S (2019) TENDL: complete nuclear data library for innovative nuclear science and technology. *Nucl Data Sheets* 155:1–55
37. Elbinawi A, Ali BM, Zaghloul AM, Al-Abyad M, Ditrói F, El-anwar N (2026) Investigation of alpha-particles interaction with zirconium: Cross-section measurements and isomeric cross-section ratios. *Appl Radiat Isot* 231:112510
38. Aliev RA, Artiushova EV, Moiseeva AN, Kormazeva ES, Novikov VI (2024) Alpha-particles induced reactions on $^{\text{nat}}\text{Zr}$ as a pathway of medical ^{90}Nb production. *Appl Radiat Isot* 214:111544
39. Thaslim TTV, Musthafa MM, Midhun CV, Ghugre S, Gokul Das H, Swapna B, Najmunnisa T, Rijin NT, Dasgupta S, Datta J (2023) The total neutron production from the alpha induced reaction on natural zirconium. *Eur Phys J A* 59:167
40. Murata T, Aikawa M, Saito M, Ukon N, Komori Y, Haba H, Takács S (2019) Production cross sections of Mo, Nb and Zr radioisotopes from α -induced reaction on $^{\text{nat}}\text{Zr}$. *Appl Radiat Isot* 144:47–53
41. De La Vega Vedoya M, Wasilevsky C, Nassiff SJ (1981) Alpha particle induced reactions on zirconium. *J Radioanal Chem* 67(1):165–181
42. Kiss GG, Szegedi TN, Mohr P, Jacobi M, Gyürky G, Huszánk R, Arcones A (2021) Low-energy measurement of the $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ reaction cross section and its impact on weak r -process nucleosynthesis. *Astrophys J* 908(2):202
43. Villa NE, Skuridin VS, Golovkov VM, Garapatsky AA (2020) Cross section of the $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ reaction induced by α -particles beams on $^{\text{nat}}\text{Zr}$ targets. *Appl Radiat Isot* 166:109367

44. Hagiwara M, Yashima H, Sanami T, Yonai S (2018) Measurement of the excitation function of $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ for an alternative production source of medical radioisotopes. *J Radioanal Nucl Chem* 318:569–573
45. Pupillo G, Esposito J, Gambaccini M, Haddad F, Michel N (2014) Experimental cross section evaluation for innovative ^{99}Mo production via the (α, n) reaction on ^{96}Zr target. *J Radioanal Nucl Chem* 302:911–917
46. Chowdhury DP, Pal S, Saha SK, Gangadharan S (1995) Determination of cross section of α -induced nuclear reaction on natural Cr and Zr by stacked foil activation for thin layer activation analysis. *Nucl Instrum Methods Phys Res B* 103:261–266
47. Hamad G, Brandenburg K, Meisel Z, Brune CR, Carter DE, Ingram DC, Jones-Alberty Y, Massey TN, Saxena M, Soltesz D, Subedi SK, Voinov AV (2022) Measurements of the $^{96}\text{Zr}(\alpha, n)^{99}\text{Mo}$ cross section for astrophysics and applications. *Phys Rev C* 106:025804
48. Rochman D, Koning A, Goriely S, Hilaire S (2025) TENDL-astro: a new nuclear data set for astrophysics interest. *Nucl Phys A* 1053:122951
49. IAEA Live Chart of Nuclides.
<https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>

6 Eingesetzte Hilfsmittel

Für die Erstellung dieser Arbeit wurden folgende Hilfsmittel bzw. Software eingesetzt:

- Software „GammaVision“ (Ortec/Ametek);
- Software „hdtv – Nuclear Spectrum Analysis Tool“ (github.com/hdtv-tool);
- Software „Origin Pro“ (OriginLab);
- Software „Microsoft Word“, „Microsoft Excel“ und „Microsoft PowerPoint“ (Microsoft);
- Software „Endnote“;
- Software „DeepL“ und die verfügbaren Sprachmodelle des Anbieters „Perplexity“ zur Überarbeitung der Sprache (Rechtschreibung, Grammatik und Übersetzung).

7 Verfügbarkeit der Rohdaten

Die gemessenen Rohdaten sind auf den internen Servern der Abteilung Nuklearchemie, Universität zu Köln bzw. dem Institut für Neurowissenschaften und Medizin – Nuklearchemie (INM-5), Forschungszentrum Jülich GmbH gespeichert.

8 Danksagung

Mein Dank gilt Herrn Professor Dr. Bernd Neumaier für die Leitung des gesamten Verbundprojekts „99MoBest“ und für die Möglichkeit, die Dissertation an seinem Institut anfertigen zu dürfen.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Professor Dr. Johannes Ermert für die Übernahme der Betreuung und Begutachtung der vorliegenden Dissertation sowie Herrn Professor Dr. Mathias S. Wickleder für die Übernahme des Zweitgutachtens. Herrn Professor Dr. Andreas Zilges danke ich für die Übernahme des Vorsitzes der Prüfungskommission.

Herrn Professor Dr. Dr. h.c. mult. Syed M. Qaim, Herrn Privatdozent Dr. Erik Strub, Herrn Dr. Ingo Spahn und Herrn Dr. Michael Weinert danke ich für die vielen Gespräche und Diskussionen sowie für die fachliche Unterstützung.

Meinen zahlreichen Kollegen in der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln sowie am Institut für Neurowissenschaften und Medizin – Nuklearchemie (INM-5) am Forschungszentrum Jülich, im Speziellen Herrn Marco Michel, Herrn Lucas Mues, Frau Anna-Lena Elsner, Herrn Dr. Chris Hoffmann, Herrn Simon Obrusnik und Frau Melisa Maslo danke ich für die immerwährende Unterstützung.

Herrn Stefan Spellerberg und den Zyklotronoperatoren am INM-5, Frau Marina Birr, Herrn Ingo Montag und Herrn Manfred Holzgreve, danke ich für zahlreichen durchgeführten Bestrahlungen. Darüber hinaus gilt mein Dank auch Herrn Björn Meyer, Herrn Sebastian Becker, Frau Selina Stöckler und Herrn Norbert Ponten.

Dem Bundesministerium für Forschung, Technologie und Raumfahrt (BMFT) gilt der Dank für die Bereitstellung der finanziellen Mittel (Förderkennzeichen 02NUK080A) und dem Projektträger Karlsruhe (PTKA) für die Trägerschaft des Projekts.