Kernchemische Studien zur Entwicklung neuerer Produktionsverfahren für die therapierelevanten Radionuklide ^{140}Nd, ^{192}Ir, ^{191}Pt, ^{193m}Pt und ^{195m}Pt

Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades

der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität zu Köln

vorgelegt von

Karsten Hilgers

aus Grevenbroich

Druckerei der Forschungszentrum Jülich GmbH

2005

Berichterstatter:	Prof. Dr. Dr. h. c. S. M. Qaim
	Prof. Dr. H. H. Coenen
Tag der mündlichen Prüfung:	03. November 2005

Die vorliegende Arbeit wurde in der Zeit von September 2002 bis August 2005 am Institut für Nuklearchemie (INC) der Forschungszentrum Jülich GmbH unter Anleitung von Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. S. M. Qaim durchgeführt.

Kurzzusammenfassung

Es wurden neue Produktionsrouten der therapierelevanten Radionuklide ^{140}Nd, ^{192}Ir, ^{191}Pt, ^{193m}Pt und ^{195m}Pt untersucht. Kernreaktionsdaten wurden mit Hilfe der Folienstapeltechnik gemessen und mit den Ergebnissen theoretischer Rechnungen verglichen.
Für die Platinnuklide wurde eine Produktionsmethode entwickelt.

Zur Produktion von ^{140}Nd wurden die ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd und ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd Reaktionen untersucht. Dabei wurden auch Wirkungsquerschnitte von Kernreaktionen ermittelt, die zu den Nebenprodukten ^{141}Nd, ^{139}Nd und ^{139}Ce führten. Die erhaltenen experimentellen Daten wurden mit Ergebnissen der Rechnungen mit ALICE-IPPE verglichen. Ein Vergleich der Ausbeuten ergab, dass die ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd Reaktion eine höhere Ausbeute liefert.

Für die Produktion von ^{192}Ir wurden Kernreaktionsdaten der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion ermittelt und mit den Ergebnissen der Rechnungen der Codes ALICE-IPPE und EMPIRE II verglichen. Die Ausbeute dieser Reaktion wurde mit der Reaktorproduktion dieses Nuklids verglichen. Die Reaktorproduktion erwies sich dabei als geeigneter zur Produktion von ^{192}Ir.

Kernreaktionsdaten wurden zudem für die ^{192}Os(α,n)^{195m}Pt, ^{192}Os(α,3n)^{193m}Pt und ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktionen bestimmt. Die Aktivität der Nuklide ^{193m}Pt und ^{195m}Pt wurde nach chemischer Abtrennung mittels Röntgenspektrometrie bestimmt. Ein Vergleich mit dem Rechencode ALICE-IPPE ergab, das dieser die experimentellen Ergebnisse nur unzureichend wiedergibt. Die untersuchten Reaktionen wurden mit anderen Produktionsmethoden, insbesondere der Reaktorproduktion von ^{195m}Pt, verglichen. Die ^{192}Os(α,n)^{195m}Pt Reaktion weist zwar niedrigere Ausbeuten, jedoch höhere spezifische Aktivität und niedrigere Targetkosten auf.

Für die Nuklide ^{193m}Pt und ^{195m}Pt wurde eine Produktionsmethode entwickelt. Die experimentell erhaltenen Gesamtausbeuten betrugen 0,9 MBq ^{195m}Pt bei einer spezifischen Aktivität von ca. 150 GBq/g Pt und 8,7 MBq ^{193m}Pt mit ca. 3 TBq/g Pt. Die experimentell erhaltenen Ausbeuten wurden mit den theoretisch berechneten verglichen. Eine zufriedenstellende Übereinstimmung konnte festgestellt werden.

Abstract

New production routes for the therapeutically useful radionuclides ^{140}Nd, ^{192}Ir, ^{191}Pt, ^{193m}Pt and ^{195m}Pt were investigated. Cross section data were measured using the stacked-foil technique and compared with theoretical calculations. A production method for the platinum nuclides was developed.

The ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd and ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd reactions were investigated for production of ^{140}Nd. Cross section data of nuclear reactions leading to the side products ^{141}Nd, ^{139}Nd and ^{139}Ce could also be achieved. The experimental data were compared with theoretical calculations using the code ALICE-IPPE. A comparison of the calculated thick target yields showed that the ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd reaction gives a higher yield.

The ^{192}Os(p,n)^{192}Ir reaction was examined in the context of the production of ^{192}Ir. Cross section data were determined and compared with theoretical calculations using the codes ALICE-IPPE und EMPIRE II. The yield of this reaction was compared with the yield of the reactor production of this nuclide. The reactor production seems to be more suitable because of a higher purity and yield.

Cross section data were measured for the ^{192}Os(α,n)^{195m}Pt, ^{192}Os(α,3n)^{193m}Pt and ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt reactions. The activity of ^{193m}Pt und ^{195m}Pt was determined by X-ray spectroscopy after a chemical separation procedure. The ALICE-IPPE code was found to be inappropriate to reproduce the experimental values. The calculated yields were compared with the yields of other reactions, especially the reactor production of ^{195m}Pt. The yield of the ^{192}Os(α,n)^{195m}Pt reaction is lower compared to the yield of the reactor production, but offers lower target costs and higher specific activity.

A production method for ^{193m}Pt und ^{195m}Pt was developed. Batch yields of 0.9 MBq ^{195m}Pt (specific activity of about 150 GBq/g Pt) and 8.7 MBq ^{193m}Pt (ca. 3 TBq/g Pt) could be achieved. The experimental yields were compared with the calculated yields. The agreement between these two data sets was satisfactory.

Inhaltsverzeichnis

1 EINLEITUNG 1

1.1 STRUKTUR DER ATOMKERNE 1
1.2 KERNREAKTIONEN 3
1.3 WIRKUNGSQUERSCHNITT 7
1.4 ENERGIEVERLUST VON GELADENEN TEILCHEN IN MATERIE 9
1.5 DIFFERENTIELLE UND INTEGRALE AUSBEUTE 11
1.6 ERMITTLUNG VON KERNREAKTIONSDATEN 12
1.6.1 Herstellung der Bestrahlungsproben 12
1.6.2 Targetchemie 12
1.6.3 Aktivitätsmessung 13
1.6.4 Bestimmung der Absolutaktivität 14
1.6.5 Flussbestimmung 15
1.6.6 Kontrolle der Teilchenenergie 18
1.6.7 Berechnung des Wirkungsquerschnitts und dessen Unsicherheit 19
1.7 RADIOCHEMISCHE TRENNMETHODEN 20
1.7.1 Solventextraktion 20
1.7.2 Ionenaustauschchromatographie 21
1.8 RADIOTHERAPIE 22
1.9 VERWENDUNGSFORM DER IN DIESER ARBEIT UNTERSUCHTEN NUKLIDE 26
1.10 ASPEKTE DER KOMPLEXCHEMIE DES PLATINS 27
1.11 PRODUKTIONSMETHODEN DER IN DIESER ARBEIT BEHANDELTEN RADIONUKLIDE 28
1.12 EIGENSCHAFTEN DER UNTERSUCHTEN NUKLIDE 30

2 PROBLEMSTELLUNG 32

3 EXPERIMENTELLER TEIL 34

3.1 KERNDATENMESSUNGEN 34
3.1.1 Herstellung der dünnen Bestrahlungsproben 34
3.1.2 Bestrahlungsproben und -einrichtungen 38
3.1.3 Chemische Aufarbeitung des bestrahlten Targetmaterials 42
3.1.4 Bestimmung der Radioaktivität 44
3.1.5 Berechnung der Teilchenflüsse und Reaktionswirkungsquerschnitte; Abschätzung der Unsicherheiten 49
3.2 AUSBEUTERECHNUNG AUS DER ANREGUNGSFUNKTION 53
3.3 METHODISCHE ENTWICKLUNG ZUR PRODUKTION VON PLATINNUKLIDEN 54
3.3.1 Herstellung eines Hochstromtargets 54
3.3.2 Bestrahlungen 54
3.3.3 Chemische Abtrennung des Platins 56

3.3.4 Qualitätskontrolle des Produktes ... *57*

4 KERNMODELLRECHNUNGEN ... **58**

4.1 ALICE-IPPE ... 58
4.2 EMPIRE II ... 59

5 ERGEBNISSE UND DISKUSSION ... **60**

5.1 REAKTIONSSCHWELLEN ... 60
5.2 KERNREAKTIONSDATEN ZUR PRODUKTION VON ^{140}ND ... 62
5.2.1 Daten der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)-Reaktionen ... *62*
5.2.2 Daten der ^{141}Pr(p,xn)-Reaktionen ... *71*
5.2.3 Vergleich der in dieser Arbeit untersuchten Produktionsmethoden für ^{140}Nd ... *80*
5.3 KERNREAKTIONSDATEN ZUR PRODUKTION VON ^{192}IR ... 82
5.3.1 Anregungsfunktion der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion ... *82*
5.3.2 Ausbeuterechnung ... *83*
5.3.3 Produktionsmöglichkeit und Vergleich mit der Reaktorproduktion ... *85*
5.4 PRODUKTION VON ^{195M}PT, ^{193M}PT UND ^{191}PT ... 87
5.4.1 Kernreaktionsdaten ... *87*
5.4.2 Ausbeuten der ^{192}Os(□,xn)^{193m,195m}Pt Reaktionen ... *91*
5.4.3 Ausbeute der ^{192}Os(^{3}He□n)^{191}Pt Reaktion ... *93*
5.4.4 Produktion von ^{193m}Pt und ^{195m}Pt und Qualitätskontrolle des Produkts ... *94*
5.4.5 Vergleich zwischen Reaktor- und Zyklotronproduktion von ^{193m}Pt und ^{195m}Pt ... *95*
5.4.6 Vergleich von Produktionsmethoden des Radionuklids ^{191}Pt ... *97*

6 ZUSAMMENFASSUNG ... **99**

7 ANHANG ... **102**

7.1 VERWENDETE STANDARDPRÄPARATE ... 102
7.2 VERWENDETE CHEMIKALIEN ... 103

8 LITERATUR ... **104**

1 Einleitung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit Untersuchungen zur Produktion der Therapienuklide ^{140}Nd, ^{192}Ir, ^{191}Pt, ^{193m}Pt und ^{195m}Pt. Dabei wurden neben der Ermittlung der Kernreaktionsdaten zur Produktion des jeweiligen Nuklids auch Untersuchungen der Nebenreaktionen, die zu isotopen Verunreinigungen führen, durchgeführt. Des Weiteren wurden die experimentell ermittelten Daten mit den Ergebnissen theoretischer Rechnungen verglichen. Für die untersuchten Radionuklide des Platins wurde eine neue Produktionsmethode ausgehend von angereichertem ^{192}Os entwickelt.

1.1 Struktur der Atomkerne

Zur Beschreibung verschiedener Kernphänomene, beispielsweise der Existenz besonderer stabiler Nuklide mit bestimmten Protonen- und Neutronenzahlen („magische Zahlen“), dienen verschiedene Modelle, die jeweils einzelne Aspekte nuklearer Eigenschaften erklären. Zur Erklärung des Auftretens magischer Zahlen dient das Schalenmodell, bei dem alle Nukleonen als schwach wechselwirkend und damit als unabhängig beschrieben werden. Als Vergleich zieht dieses Modell die Schalen in den Elektronenhüllen der Atome heran. Dort gibt es ebenfalls stabile Konformationen von Elektronen (vgl. Edelgasschale). Das Auftreten und die Lage der Kernniveaus kann mit Hilfe des Fermi-Gasmodells berechnet werden. Die Nukleonen werden bei diesem Modell als frei betrachtet und befinden sich in einem Potential, das sie im Grundzustand nicht verlassen können. Wendet man die Schrödinger-Gleichung auf dieses System an, so erhält man bei dem so genannten „Teilchen im Kasten“ ein Niveau-Schema, bei dem die Dichte dieser Niveaus mit höherer Anregungsenergie enger wird. Bei Anregung von einigen MeV über dem Grundzustand werden diese Niveaus so eng, dass sie sich zu einem Kontinuum überlagern. Eine Darstellung dieses Modells ist in Abbildung 1 am Beispiel von ^{141}Nd zu finden (schematisch nach [1]).

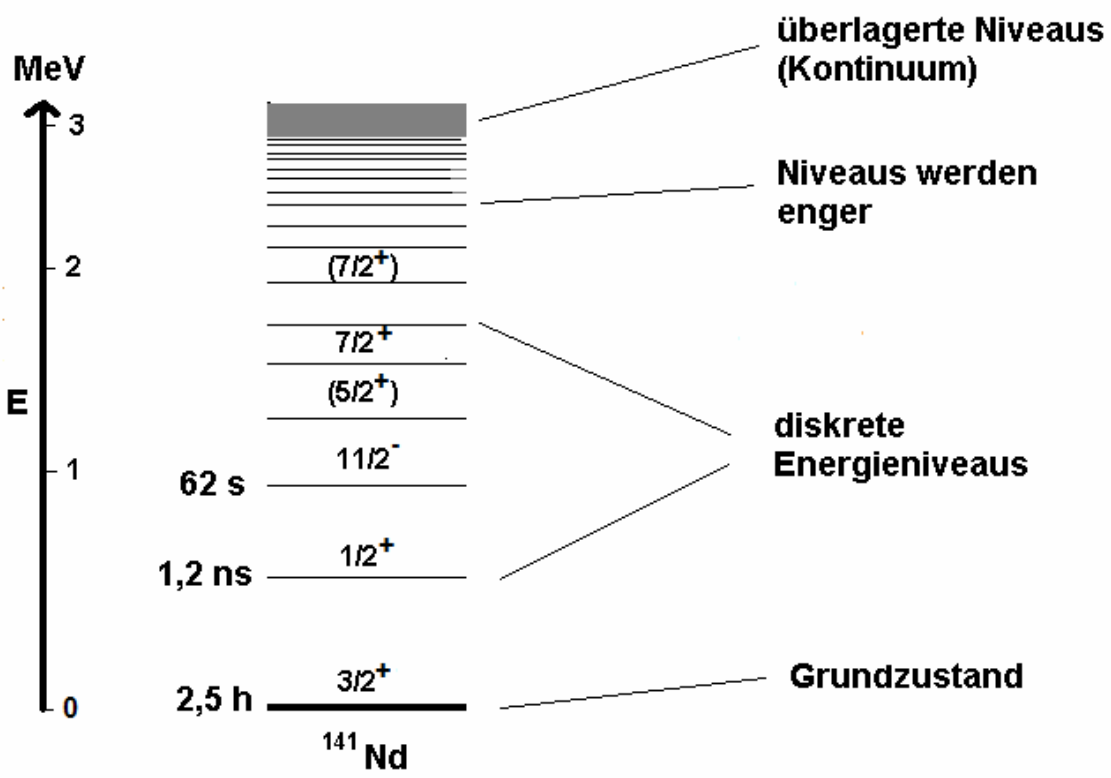

Abbildung 1: Niveauschema der Nukleonen nach dem Modell des „Teilchens im Kasten“ am Beispiel von ^{141}Nd [nach 1]

1.1.1 Isomerie

Ist ein Übergang zwischen einem höheren Kernniveau (siehe oben, in Abbildung 1 beispielsweise das zweite Niveau über dem Grundzustand mit dem Spin $11/2^-$) und dem Grundzustand nach der Quantenmechanik gehindert oder „verboten“, so kann dieses Niveau eine messbare Halbwertszeit oberhalb von 10^{-14} s aufweisen und wird isomerer Zustand genannt (z. B. ^{141m}Nd hat eine Halbwertszeit von 62 s, siehe Abbildung 1). Die Halbwertszeiten dieser Zustände reichen von ms bis vielen Millionen Jahren (siehe ^{180m}Ta) und können auch länger sein als die des Grundzustandes. Zudem kann der isomere Zustand eines Nuklids sich auch unabhängig durch andere Zerfallsarten abregen als der Grundzustand (z. B. ^{139m}Nd). Diese isomeren Zustände müssen somit fast wie eigene Nuklide mit entsprechenden Zerfallseigenschaften behandelt werden. Es gibt des Weiteren Radionuklide, die mehr als nur einen isomeren Zustand aufweisen (z. B. ^{192}Ir).

1.2 Kernreaktionen

Kommen sich zwei Kernteilchen so nah, dass sie miteinander wechselwirken können, so können verschiedene Arten dieser Wechselwirkungen auftreten, die von den Energien der Teilchen abhängen. Zumeist handelt es sich bei den genannten Teilchen um einen Kern als Target und ein sich bewegendes Teilchen, Projektil genannt. Der Kern befindet sich in relativer Ruhe zum Projektil. Man unterscheidet verschiedene Arten der Wechselwirkung.
Ist die Geschossenergie zu klein, um in den Kern einzudringen, so werden die Wechselwirkungen als Streuprozesse bezeichnet. Bei diesen Prozessen treten solche mit Energieverlust des Projektils auf (inelastische Streuung) oder ohne (elastische Streuung). Der Betrag der Energie, den das Projektil bei der inelastischen Streuung verliert, wird auf den Kern übertragen und regt diesen auf ein höheres Niveau an. Dieser Betrag muss somit genau dem Unterschied zweier Kernniveaus entsprechen.
Unter einer Kernreaktion versteht man die Wechselwirkung zweier Teilchen, die sich so nahe kommen, dass Kernkräfte wirksam werden.

Das Produkt einer solchen Reaktion kann radioaktiv oder stabil sein. Eine solche Reaktion wird als binukleare Kernreaktion bezeichnet und in folgender Form geschrieben:

$$A + x \rightarrow B + y \qquad (01)$$

Dabei wird der Targetkern mit A, das Projektil mit x bezeichnet. B bezeichnet das Produkt der Reaktion und y steht für die austretenden Teilchen, von denen es mehrere und auch verschiedene geben kann.
In Kurzfassung wird diese Gleichung auf die nachstehende Weise geschrieben:

$$A(x,y)B \qquad (02)$$

Will man Kerne bei Kernreaktionen beschreiben, so leistet das optische Modell gute Dienste. Kernreaktionen werden innerhalb dieses Modells in Analogie zum Lichtdurchgang durch Materie behandelt: Der Kern besitzt eine gewisse Durchlässigkeit gegenüber den einfliegenden Teilchen, jedoch treten auch einige in Wechselwirkung.

Die Mechanismen nach denen Kernreaktionen ablaufen, hängen von der Masse des Targetkerns und der Projektilenergie ab. Ist die Projektilenergie nicht zu hoch, d. h. bis etwa

25 MeV, so steht genug Zeit zur Verfügung, die Energie, die vom Projektil auf den Kern übertragen wurde, auf alle Nukleonen zu verteilen. Es entsteht ein angeregter Zwischenkern, der so genannte „Compoundkern“ [2,3]. Dieser kann sich im weiteren Verlauf der Reaktion durch verschiedene Reaktionskanäle abreagieren, für die jeweils eine gewisse Wahrscheinlichkeit besteht. Eine Compoundkernreaktion ist ein relativ langsamer Prozess, der innerhalb von etwa 10^{-15} s abläuft. Die Statistik spielt bei diesen Reaktionen eine große Rolle und die Emission von Nukleonen erfolgt symmetrisch um 90°.

Bei höheren Projektilenergien (maßgeblich ab 30 MeV) treten zunehmend so genannte Vorgleichgewichtsprozesse (Precompoundreaktionen) auf. Bei diesen Prozessen tritt eine Emission von Teilchen auf, bevor die Anregungsenergie auf alle Nukleonen übertragen wurde. Zur Erklärung bzw. als Modell dient dabei das schon erwähnte Fermi-Gasmodell. Bei Vorgleichgewichtsprozessen werden durch die Projektilenergie Teilchen des Fermi-Gases angeregt und es entstehen Teilchen (p)/Loch (h) Paare, genannt Excitonen. Nach der Bildung erster Excitonen kann es durch schwache Restwechselwirkungen zu einer Umverteilung der Excitonen, bei der neue Excitonen entstehen, oder zu einer Emission von Teilchen kommen.
In Abbildung 2 ist ein Schema des Excitonen-Modells dargestellt.

Vorgleichgewichtsprozesse sind schneller als Compoundkernreaktionen und haben eine Dauer von ca. 10^{-18} s. Die Teilchenemission erfolgt leicht vorwärtsgerichtet.

Bei noch höheren Energien (oberhalb 50 MeV) ist die Zeitdauer einer Reaktion noch geringer (10^{-21} s). Bei solchen Zeitspannen können keine Energien mehr von den direkt beteiligten Nukleonen auf die anderen Teilchen übertragen werden. Man spricht in diesem Fall von Direktprozessen, bei denen kein angeregter Kern gebildet wird. Direktprozesse sind die so genannten „knock-out“ Reaktionen, in deren Verlauf im Kern vorgebildete Cluster aus dem Atomkern herausgeschlagen werden (z. B. bei der $^{7}Li(n,n't)^{4}He$ Reaktion) und auch Transferreaktionen.

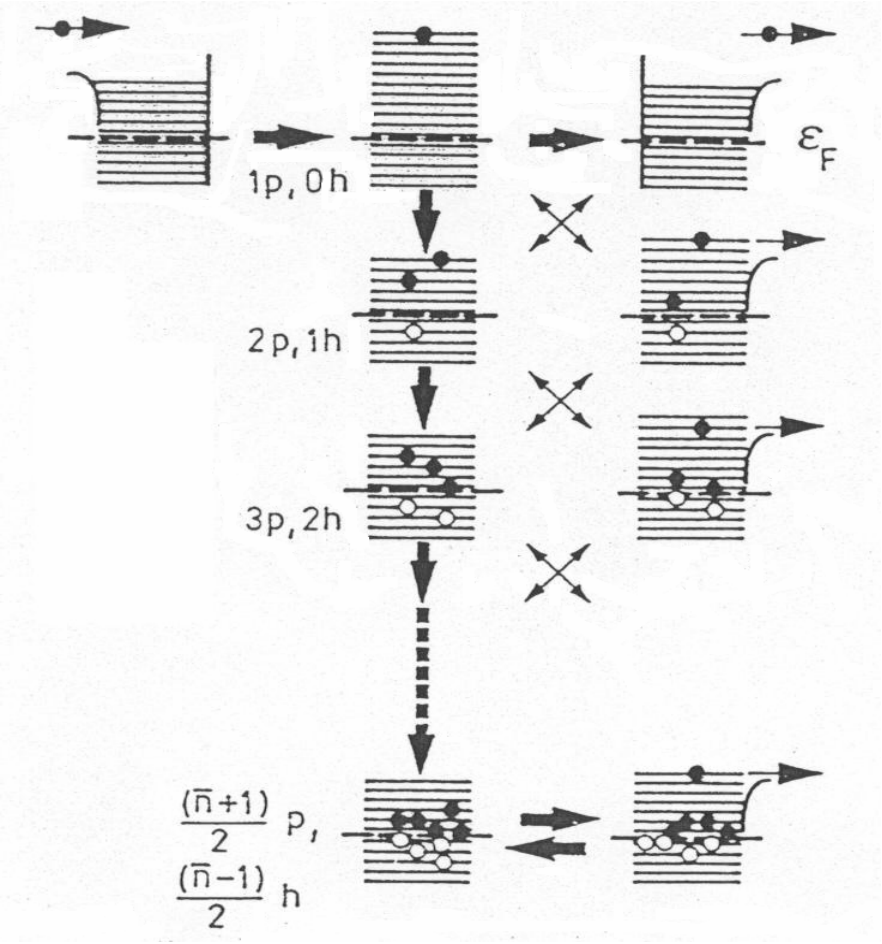

Abbildung 2: Schema des Excitonen-Modells

Diese unterteilt man in „pick-up“-Reaktionen, bei denen das Projektil ebenfalls vorgebildete Atomcluster „mitnimmt“ (z. B. bei der $^{14}N(n,t)^{12}C$ Reaktion) und „Stripping“-Reaktionen, bei denen das Projektil bei der Wechselwirkung mit dem Kern auseinander bricht (bei Deuteronen oder ^{3}He, unwahrscheinlich für Alpha-Teilchen) und ein Neutron beispielsweise im Kern deponiert wird ($^{26}Mg(d,p)^{27}Mg$ Reaktion). Auch die Ladungsaustauschreaktionen gehören zu den Direktprozessen. Merkmale der Direktprozesse sind nach vorne gerichtete Winkelverteilungen und eine höhere Energie der emittierten Teilchen als bei Compoundkernreaktionen. Auf Grund ihrer Kernstruktur treten diese Reaktionen bevorzugt bei leichten Kernen ($A < 30$) auf.
Eine Kernreaktion läuft jedoch niemals nur nach einem Mechanismus ab, sondern es haben meist alle Mechanismen Anteile an einer Reaktion.

Für eine einfache binukleare Reaktion nach Gleichung (01) gilt die Energie- und Impulserhaltung. Ferner wird angenommen, dass sich alle Teilchen vor und nach der Reaktion

im Grundzustand befinden. Bei der Energetik von Kernreaktionen treten viele Analogien zur Energetik von chemischen Reaktionen auf [4]. Die Reaktionsenthalpie ΔH einer chemischen Reaktion hat in der Energie ΔE, die bei einer Kernreaktion frei wird und auch als Q-Wert bezeichnet wird, ihr Analogon. Ein Unterschied in der Bezeichnung einer chemischen Reaktion und einer Kernreaktion besteht darin, dass eine chemische Reaktion exotherm genannt wird, wenn ΔH negativ ist, während eine Kernreaktion dann exoenergetisch genannt wird, wenn ΔE positiv ist. Für den Fall endothermer bzw. endoenergetischer Reaktionen gilt das Entsprechende. Die Berechnung von ΔE erfolgt unter Berücksichtigung der Einstein´schen Beziehung und beruht auf der Massendifferenz von Edukten und Produkten. Damit erhält man folgende Gleichung:

$$\Delta E = \left(m_B + m_y - m_A - m_x\right) \cdot c^2 \tag{03}$$

Dabei bedeuten m_i (mit i = x, y, A und B) die Massen der beteiligten Teilchen (siehe Gleichung (01)) und c die Lichtgeschwindigkeit.
Mit der Einführung der Nuklidmassen M nach folgender Gleichung

$$M = m + Z \cdot m_e \tag{04}$$

folgt aus Gleichung (03) folgende Beziehung:

$$\Delta E = \left(M_B + M_y - M_A - M_x\right) \cdot c^2 \tag{05}$$

Dabei bedeuten m_e die Elektronenruhemasse und Z die Ordnungszahl.
Für den Fall der β^+-Strahlung muss noch ein Beitrag von 2 m_e zur Masse addiert werden.

Bei endoenergetischen Reaktionen muss Energie zugeführt werden, damit die Reaktion abläuft. Wird in einer Kernreaktion ein Compoundkern gebildet, so erhält dieser unter Anwendung des Impulserhaltungssatzes die Anregungsenergie E*:

$$E^* = E_x \cdot \left(1 - \frac{M_x}{M_K}\right) \cdot c^2 \qquad (06)$$

Dabei bedeuten E_x die Energie des Projektils B, M_x die Nuklidmasse des Projektils und M_K die Nuklidmasse des Compoundkerns.

Soll eine Kernreaktion ausgelöst werden, so muss diese Anregungsenergie größer (oder gleich) der negativen Energie sein, die nach Gleichung (06) berechnet wurde. (Bei endoenergetischen Reaktionen ist ΔE negativ.) Aus dieser Bedingung ergibt sich die sogenannte Schwellenenergie E_S für das Projektil x, die zur Auslösung einer Kernreaktion nötig ist:

$$E_s = -\Delta E \cdot \left(1 + \frac{M_x}{M_A}\right) \cdot c^2 \qquad (07)$$

Die bei geladenen Teilchen zusätzlich auftretende Coulomb-Barriere wird gewöhnlich nach klassischem Modell berechnet. Jedoch handelt es sich bei Kernreaktionen um Prozesse, die gemäß quantenmechanischer Regeln ablaufen. Daher stimmen die klassisch berechnete Coulombschwelle und die tatsächlich experimentell erhaltenen Schwellen oftmals nicht überein; die gemessen Schwellen sind oftmals niedriger.

1.3 Wirkungsquerschnitt

Der Wirkungsquerschnitt σ einer Kernreaktion ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit der Wechselwirkung eines Projektils mit einem Targetkern. Als einfaches Modell für den Wirkungsquerschnitt dient folgende Betrachtungsweise:
Das Projektil wird als Punkt aufgefasst, der sich in Strahlrichtung auf den Targetkern zu bewegt, der wiederum als senkrecht zu diesem Strahl stehende Kreisscheibe aufgefasst wird.

Eine Kernreaktion kann nur dann ausgelöst werden, wenn das Projektil diese Kreisscheibe trifft.

Die Einheit des Wirkungsquerschnitts ist das *barn*, das die Einheit einer Fläche aufweist (1 barn entspricht 10^{-28} m^2). Bei Größen innerhalb der Kernausdehnung ist diese klassische Vorstellung jedoch nicht mehr korrekt, da quantenmechanische Effekte nicht vernachlässigbar sind. Zur Berechnung des Wirkungsquerschnitts wird die Aktivierungsgleichung (8) genutzt:

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_A - \lambda_B \cdot N_B \qquad (08)$$

Nach Gleichung (8) ist die Bildungsrate des Produkts B proportional zur Teilchenflussdichte Φ und zur Zahl der Targetkerne N_A. Die Proportionalitätskonstante ist der Wirkungsquerschnitt σ und gibt die Wahrscheinlichkeit einer Kernreaktion an. Das zweite Glied in Gleichung (8) berücksichtigt den Zerfall des Produkts B, λ_B gibt die Zerfallskonstante des Produkts B an.

Wird Gleichung (8) in den Grenzen t = 0 bis t = t integriert, so erhält man für den Wirkungsquerschnitt Gleichung (9):

$$\sigma = \frac{\lambda \cdot N_B}{N_A \cdot \Phi \cdot \left(1 - e^{-\lambda_B t}\right)} \qquad (09)$$

Für die Aktivität A_B des Produkts B nach einer Bestrahlzeit t ergibt sich daraus Gleichung (10):

$$A_B = \lambda \cdot N_B = N_A \cdot \Phi \cdot \sigma \cdot \left(1 - e^{-\lambda_B t}\right) \qquad (10)$$

Unter der Annahme eines konstanten Teilchenflusses I in der bestrahlten Probe und unter Zuhilfenahme einiger makroskopischer Größen, durch deren Messung die Bestimmung der Teilchenzahl N_A der Targetkerne möglich ist, kann diese Gleichung zur Bestimmung des Wirkungsquerschnitts dienen:

$$\sigma = \frac{A_{abs} \cdot M_A \cdot F}{H \cdot I \cdot N_L \cdot m_A \left(1 - e^{-\lambda_B t}\right)} \qquad (11)$$

mit A_{abs} = Absolutaktivität nach Ende der Bestrahlung

M_A = Atommasse des Targetnuklids A

F = Bestrahlte Fläche

H = Isotopenhäufigkeit des Targetnuklids

I = Projektilfluss [Teilchen/s]

m_A = Masse des Targets

N_L = Avogadro-Konstante

t = Dauer der Bestrahlung

λ_B = Zerfallskonstante des Produkts B

Bei dieser Gleichung ist die Teilchenflussdichte Φ durch den Teilchenfluss I und die Fläche F dargestellt. Der Wirkungsquerschnitt einer Reaktion ist abhängig von der Projektilenergie. Die Auftragung des Wirkungsquerschnitts gegen die Projektilenergie wird *Anregungsfunktion* der betreffenden Kernreaktion genannt. Für die Produktion eines Nuklids erkennt man anhand einer solchen Anregungsfunktion günstige Bereiche, sowohl was die Ausbeute als auch isotope Verunreinigungen betreffen. Zudem dient die Messung von Anregungsfunktionen zur Validierung der Modellrechnungen von Kernreaktionen.

1.4 Energieverlust von geladenen Teilchen in Materie

Durch eine Folge von Streuungs-, Ionisierungs- und Anregungsprozessen verlieren geladene Teilchen beim Durchgang durch Materie einen Teil ihrer Energie. Sinkt die Teilchenenergie unter die thermische Energie, die Energie, die der Wärmebewegung entspricht, so gehört das Teilchen nicht mehr dem Strahl an. Man spricht von einem „Beam-stop“. Des Weiteren werden die geladenen Teilchen durch Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld der Atomkerne oder der Elektronenhülle gestreut oder aus ihren Bahnen abgelenkt. Sie können dadurch sogar ihre Flugrichtung ändern. Erste Berechnungen zur Energiedegradierung stellte Bohr auf klassischem Wege an. Die Berücksichtigung quantenmechanischer Effekte erfolgte durch Bethe und Bloch [5,6] und führte zur Einführung der Bethe-Bloch-Gleichung (12).

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi Z^2 e^4}{mc^2} NZ\left[\ln\frac{2mc^2\beta^2 Q}{I^2\left(1-\beta^2\right)}\right] - 2\beta^2 \qquad (12)$$

mit Z = Kernladung des Projektils

e = Elementarladung

m = Masse des Elektrons

c = Lichtgeschwindigkeit

β = Quotienten aus der Projektilgeschwindigkeit und der Lichtgeschwindigkeit

NZ = Zahl der Elektronen pro Volumeneinheit des Targets

Q = maximaler Energietransfer vom Projektil auf die Elektronen

I = mittleres Ionisationspotential des Targetmaterials

E = Energie des Projektils

Diese Gleichung beschreibt den Energieverlust geladener Teilchen in Materie durch Ionisation der Materie durch die Projektile. Zur Quantifizierung dient das lineare Bremsvermögen (linear energy transfer - LET), das die Energieabgabe pro Weg beschreibt. Dieser Energieverlust wird auf inelastische Streuung der Projektile an den Hüllenelektronen zurückgeführt, der quantenmechanisch in diskreten Schritten verläuft. Bei hochenergetischen Projektilen kann jedoch der Energieverlust makroskopisch als kontinuierlich angesehen werden, da diese Projektile nicht in große Wechselwirkung mit den Hüllenelektronen treten. Durch Williamson et al. [7] erfolgte auf empirischem Weg eine Korrektur der Bethe-Bloch-Gleichung, so dass zwei weitere wichtige Prozesse, die zum Energieverlust geladener Teilchen in Materie bei niedrigen Energien beitragen, Berücksichtigung fanden. Diese Prozesse sind erstens der Ausschluss von Elektronen niedriger Schalen bei Streuprozessen und zweitens die Verminderung der mittleren Teilchenladung durch Rekombinationsprozesse.

Zur Bestimmung der Anregungsfunktion einer Kernreaktion wird bei Verwendung geladener Teilchen als Projektil häufig die Folienstapeltechnik („Stacked-Foil“-Technik) genutzt. Die Berechnung der Energiedegradierung des Projektils erfolgt bei dieser Technik mittels des institutseigenen Programms „STACK“ (B. Scholten, T. Beth, Forschungszentrum Jülich GmbH, Institut für Nuklearchemie), das iterativ den Energieverlust der Teilchen nach den Tabellenwerken von Williamson et al. [7] berechnet. So ist die effektive Energie der Projektile bei jeder Folie bekannt und es können in einem Experiment Wirkungsquerschnitte bei mehreren Energien bestimmt werden.

1.5 Differentielle und integrale Ausbeute

Die differentielle Ausbeute eines Nuklids wird an dünnen Targets bestimmt, bei denen der Energieverlust des Projektils beim Durchgang durch das Target vernachlässigt werden kann. So kann der Wirkungsquerschnitt als konstant angesehen werden und für die differentielle Ausbeute folgt aus Umstellen von Gleichung (11):

$$Y = A_{abs} = \frac{\sigma \cdot H \cdot I \cdot N_L \cdot m_A}{M_A \cdot F} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_B t}\right) \tag{13}$$

Werden Bestrahlungen zur Produktion eines Nuklids durchgeführt, handelt es sich bei den genutzten Targets um dicke Targets, bei denen der Energieverlust des Projektils beim Durchgang nicht vernachlässigt werden kann. Für dicke Targets werden dementsprechend integrale Ausbeuten bestimmt, bei denen die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der innerhalb des Targets abnehmenden Energie berücksichtigt wird [8]:

$$Y = A_{abs} = \frac{H \cdot I \cdot N_L}{M_A} \cdot \left(1 - e^{-\lambda_B t}\right) \cdot \int_{E_1}^{E_2} \left(\frac{dE}{d\rho x}\right)^{-1} \tag{14}$$

Die differentielle Reichweite $(dE/d\rho x)^{-1}$ des Projektils kann aus Tabellenwerken [7] entnommen oder mit Hilfe des Programms „STACK“ berechnet werden, der Teilchenfluss wird auch hier als konstant angenommen. Integralen Ausbeuten werden üblicherweise auf eine Stromstärke von I = 1 µA und eine Bestrahlungsdauer von t = 1 h, differentielle Ausbeuten zumeist auf eine Energieabsorption von 1 MeV bezogen. Aus der differentiellen Ausbeute kann dann im gesamten Energiebereich $E_2 \rightarrow E_1$, der sich aus der Targetdicke ergibt, als Summe der differentiellen Ausbeuten in diesem Bereich die integrale Ausbeute berechnet werden. Für die Produktion eines Radionuklids sind die differentielle und die integrale Ausbeute wichtige Größen, mit deren Hilfe sich ein Vergleich der bestimmten Anregungsfunktion und der Ausbeute aus Produktionsversuchen und so eine Qualitätskontrolle der Ergebnisse durchführen lässt.

1.6 Ermittlung von Kernreaktionsdaten

Die schon in Abschnitt 1.4 genannte Folienstapeltechnik ist die gängige Methode zur Bestimmung von Anregungsfunktionen. Diese Technik bietet den Vorteil, dass bei einem Experiment mehrere Proben bei verschiedenen Energien bestrahlt werden können. Der Folienstapel besteht aus Target-, Monitor und gegebenenfalls Absorberfolien und wird mit einem Teilchenstrahl bekannter Energie bestrahlt. Die relevanten Arbeitsschritte werden im weiteren Verlauf genauer erläutert.

1.6.1 Herstellung der Bestrahlungsproben

Bei Bestrahlungsproben zur Kerndatenmessung ist es von größter Wichtigkeit, Targetmaterialien hoher chemischer Reinheit, definierter isotopischer Zusammensetzung und chemischer Zusammensetzung zu verwenden. Die genaue Kenntnis der physikalischen Parameter wie Masse und Dicke sowie der Probenausdehnung sind zusätzlich erforderlich, um möglichst genaue Messungen zu ermöglichen. Als Targetmaterialien stehen Folien hochreiner Metalle oder dünne Scheiben anderer Materialien, wie Gläser, Legierungen etc. zur Verfügung. Andere Targetmaterialien, die in Pulverform vorliegen, wie Oxide oder Salze, können durch pressen zu dünnen Pellets ebenfalls genutzt werden. Weitere Möglichkeiten sind die elektrolytische Abscheidung von Metallen, die Vakuumverdampfung oder die Sedimentation zur Aufbringung des Targetmaterials auf sogenannte „Backingfolien“.

1.6.2 Targetchemie

Zur Ermittlung der Radioaktivität des gewünschten Nuklids ist es nicht immer möglich, das komplette Target nach der Bestrahlung zerstörungsfrei zu messen. Gründe hierfür können eine zu hohe Matrixaktivität sein, die dazu führt, dass schwache γ-Linien nicht gemessen werden können. Manche Radionuklide weisen zudem die gleichen γ-Linien auf, so dass eine Abtrennung des gewünschten Nuklids bzw. des entsprechenden Elementes nötig wird, um es eindeutig nachweisen zu können. Eine weitere Schwierigkeit ergibt sich bei reinen Positronenstrahlern bzw. bei Nukliden, deren γ-Linien zu schwach sind, um für die γ-Spektrometrie zu dienen, denn jeder Positronenstrahler weist die Vernichtungsstrahlung auf.

Eine chemische Abtrennung ist dann besonders wichtig, wenn niedrige Aktivitäten neben hohen Aktivitäten nachgewiesen werden sollen.

Für eine chemische Abtrennung müssen folgende Kriterien beachtet werden:

- hohe radiochemische Reinheit
- hohe chemische Ausbeute
- schnelle Durchführbarkeit
- einfache Handhabung

Die radiochemische Reinheit ist wichtig, da die Abtrennung nur gelingt, wenn der zu messende Strahler in einer bestimmten Form vorliegt. Außerdem ist ein reiner Strahler mit wenig Untergrund zu messen. Hohe chemische Ausbeuten gewähren eine möglichst hohe Aktivität der Probe, was besonders zur Messung schwacher Proben nötig ist. Aber auch bei der Produktion hoher Aktivitäten ist eine hohe Ausbeute erstrebenswert, da so die zur Verfügung stehende Aktivität größer ist. Die schnelle Durchführbarkeit ist besonders bei kurzlebigen Radionukliden unabdingbar, während einfache Trennmethoden eine Fernbedienung ermöglichen, die besonders bei hohen Aktivitäten unbedingt erforderlich ist.
Die in dieser Dissertation beschriebene Targetchemie wurde weitgehend unter Berücksichtigung der o. g. Kriterien entwickelt.

1.6.3 Aktivitätsmessung

Gemäß den Anforderungen, die an eine Messung gestellt werden, kann die Aktivität mit verschiedenen Methoden bestimmt werden. Eine häufig genutzte Methode ist die γ-*Spektroskopie*, bei der sowohl Lithium-Germanium- als auch Reinst-Germanium-Detektoren genutzt werden. Voraussetzung zur Nutzung dieser Methode ist das Vorhandensein zur γ-Spektroskopie geeigneter γ-Linien. Die γγ-*Koinzidenzmessung* kann zur Bestimmung der Aktivität von Positronenstrahlern eingesetzt werden. Unter Koinzidenz versteht man die gleichzeitige Messung zweier γ-Quanten. Bei der γγ-Koinzidenzmessung werden die beiden 511 keV γ-Quanten, die bei der Annihilation eines Positrons entstehen, in Koinzidenz gemessen. Weisen die zu messenden Nuklide keine geeigneten γ-Linien auf, so muss auf Möglichkeiten zur Aktivitätsbestimmung zurückgegriffen werden, die die anderen

Arten von Strahlung messen. Für diese Zwecke kann die *Röntgenspektrometrie* eingesetzt werden, falls das gewünschte Nuklid geeignete Röntgenlinien aufweist. Des Weiteren werden die *α-Spektrometrie* und verschiedene Arten der β-Zählung genutzt, zu denen die *Flüssigszintillations*- und *Gasphasenzählung* sowie die *Gasdurchflusszählung* gehören. Diese Strahlungsarten werden „weiche" Strahlung genannt, da sie keine große Reichweite haben, was besondere Aufmerksamkeit auf die Kenntnis der Selbstabsorption lenkt. Bei γ-Strahlung spielt Selbstabsorption im gewöhnlichen Probenmaßstab (einige mL bzw. mg und weniger) kaum eine Rolle.

1.6.4 Bestimmung der Absolutaktivität

Aus der Zählrate lässt sich nach folgender Gleichung die Absolutaktivität bestimmen:

$$A_{abs} = \frac{P_A}{\varepsilon \cdot I_\gamma \cdot f_{koin} \cdot T_K} \tag{15}$$

mit A_{abs} = absolute Aktivität

P_A = Summe der Impulse eines Peaks (Peakfläche)

T_K = Messzeit mit Totzeitkorrektur

I_γ = Intensität der γ-Linie

ε = Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors

f_{koin} = Koinzidenzkorrektur

Die Ansprechwahrscheinlichkeit ist eine detektorspezifische Größe, die von Material und Größe des Detektors abhängt, aber auch vom Abstand der Probe von der Detektoroberfläche und der Energie der γ-Linie. Soll ein radioaktiver Strahler als punktförmige Quelle angesehen werden, der die Strahlung sphärisch abstrahlt, muss die Probe in einem ausreichenden Abstand von der Detektoroberfläche (ca. 10 cm) gemessen werden und darf keine übermäßige Flächenausdehnung aufweisen. Werden Proben bei geringeren Abständen gemessen, sind Korrekturen bezüglich der Geometrie und Koinzidenzverlusten durchzuführen. Die Koinzidenz entsteht durch zwei verschiedene Mechanismen. Unter zufälliger Koinzidenz („pulse pile up") versteht man die gleichzeitige Messung zweier γ-Quanten, deren Energie sich im gemessenen Impuls zu einer Gesamtenergie addiert. Von echter Koinzidenz spricht man, wenn ein Nuklid zwei γ-Quanten unmittelbar nacheinander aussendet (Kaskaden-Zerfall). Vermieden oder vermindert werden diese beiden Formen der Koinzidenz durch

niedrige Totzeiten, d. h. Proben, bei denen durch ihre Stärke die zufällige Koinzidenz nur schwach auftritt bzw. durch höhere Abstände, bei denen die echte Koinzidenz, die vom Raumwinkel abhängig ist, weniger auftritt. In beiden Fällen wird eine höhere Energie gemessen, als die einzelnen γ-Quanten aufweisen. Die Totzeit, die Zeit in der ein Detektor nicht messbereit ist, sollte somit einen Wert von 7 % nicht überschreiten. Die Totzeit steigt mit steigender Aktivität. Wird der Wert von 7 % überschritten, so kann mittels eines größeren Abstands Abhilfe geschaffen werden. Zur Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit über den gesamten Messbereich eines Detektors werden Standardpräparate bekannter Aktivität genutzt [siehe Anhang].
Aus der Absolutaktivität beim Messzeitpunkt ergibt sich die Absolutaktivität A_0 bei Bestrahlungsende („End of Bombardment“, EOB) nach dem mononuklearen Zerfallsgesetz:

$$A_0 = \frac{A_{abs}}{e^{-\lambda t}} \tag{16}$$

1.6.5 Flussbestimmung

Werden geladene Teilchen als Projektile verwendet, so kann der Projektilfluss über eine Stromintegration mittels eines „Faraday-Bechers“ oder eines Amperemeters direkt am Target am Zyklotron erfolgen. Bei niedrigen Flüssen ist vor allem die Messung des Stromes mittels eines Amperemeters sehr ungenau, da es nur ungenügend gegen Sekundärelektronen abgeschirmt ist. Zur Flussbestimmung dienen daher Monitorreaktionen, d.h. Reaktionen, deren Anregungsfunktionen hinreichend genau bekannt sind. Der Wirkungsquerschnitt einer dieser Reaktionen kann bei bekannter Energie dieser Anregungsfunktion entnommen werden. Mit diesem Wirkungsquerschnitt kann mittels der Aktivierungsgleichung (10) der Teilchenfluss berechnet werden. Zur Bestimmung des Flusses werden dünne Metallfolien in den Folienstapel eingebaut und werden gemäß der entsprechenden Monitorreaktionen aktiviert. Die in dieser Arbeit verwendeten Monitorreaktionen sind $^{nat}Cu(p,x)^{62}Zn$, $^{nat}Cu(p,x)^{63}Zn$, $^{nat}Cu(p,x)^{65}Zn$, $^{nat}Ti(p,x)^{48}V$ für die Messung von Protonenflüssen und $^{nat}Cu(\alpha,x)^{65}Zn$, $^{nat}Cu(\alpha,x)^{66}Ga$, $^{nat}Cu(\alpha,x)^{67}Ga$ und $^{nat}Ti(\alpha,x)^{51}Cr$ für die Messung des Alpha-Teilchenflusses, sowie $^{nat}Ti(^3He,x)^{48}V$ und $^{nat}Al(^3He,x)^{22}Na$ für die Messung von ^3He-Partikelflüssen [cf. 9]. Diese Reaktionen liegen den in dieser Arbeit durchgeführten Teilchenflussberechnungen zugrunde. In den Abbildungen 3 bis 5 ist für jede der in dieser

Arbeit verwendeten Teilchenarten jeweils eine der verwendeten Anregungsfunktionen dargestellt, die dazugehörigen Zerfallsdaten in Tabelle 1 [cf. 1].

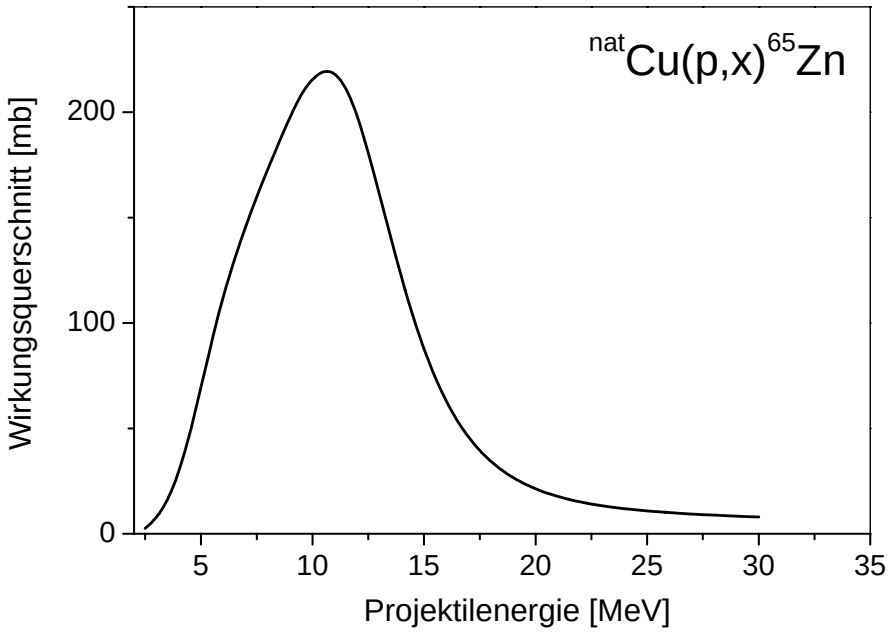

Abbildung 3: Anregungsfunktion der Monitorreaktion $^{nat}Cu(p,x)^{65}Zn$ [cf. 9]

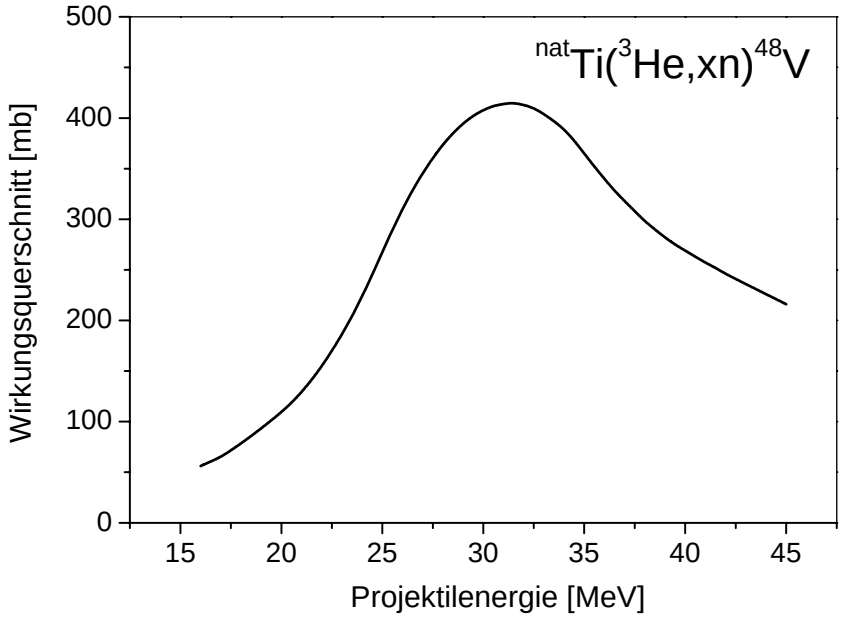

Abbildung 4: Anregungsfunktion der Monitorreaktion $^{nat}Ti(^{3}He,x)^{48}V$ [cf. 9]

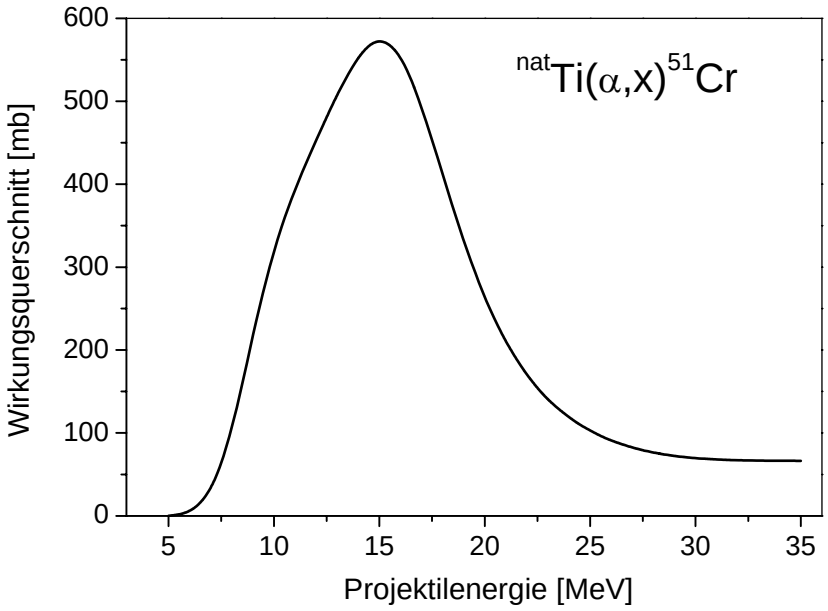

Abbildung 5: Anregungsfunktion der Monitorreaktion $^{nat}Ti(\alpha,x)^{51}Cr$ [cf. 9]

Tabelle 1: Zerfallsdaten der Produkte der Monitorreaktionen [aus 1]

Monitorreaktion	Halbwertszeit des Nuklids	Energie der γ-Linien [keV]	γ-Intensität [%]
$^{nat}Cu(p,x)^{62}Zn$	9,13 h	548,4	15,5
		596,6	26,2
$^{nat}Cu(p,x)^{63}Zn$	38,1 min	669,6	8,2
		962,0	6,5
$^{nat}Cu(p,x)^{65}Zn$ $^{nat}Cu(\alpha,x)^{65}Zn$	244,3 d	1115	50,6
$^{nat}Ti(p,x)^{48}V$	15,91 d	984	99,9
$^{nat}Ti(^{3}He,x)^{48}V$		1312	97,5
$^{nat}Al(^{3}He,x)^{22}Na$	2,6 a	1274,5	99,9
$^{nat}Cu(\alpha,x)^{66}Ga$	9,5 h	1039,2	37,0
$^{nat}Cu(\alpha,x)^{67}Ga$	3,3 d	184,6	21,2
		300,2	16,8
$^{nat}Ti(\alpha,x)^{51}Cr$	27,7 d	320,1	9,9

1.6.6 Kontrolle der Teilchenenergie

Zur Berechnung der Energiedegradierung innerhalb des Stacks dient das Programm „STACK“, so dass die Energien der Projektile an jeder Stelle des Stacks bekannt sind. Diese Energieberechnung konnte überprüft werden, indem das Verhältnis zweier Isotope, die durch Bestrahlung einer Monitorfolie gebildet werden, untersucht wird. Da dieses Verhältnis von der Energie der Teilchen abhängt, kann ein Vergleich mit der berechneten Energie durchgeführt und so die Qualität der Energieberechnung überprüft werden. Für Protonen ist diese Methode bekannt aus [10]. Dieses Prinzip ist in dieser Arbeit auf die Messung der Alphateilchenenergie übertragen worden. Auch zu diesem Zweck dienten Monitorfolien aus Kupfer, an dem die Bildung von ^{66}Ga und ^{67}Ga durch Bestrahlung mit Alpha-Teilchen gut bekannt ist [cf. 9]. Zur Berechnung des Verhältnisses dieser beiden Isotope kann Gleichung (17) herangezogen werden, die aus der Aktivierungsgleichung (10) folgt.

$$\frac{\sigma(^{66}Ga)}{\sigma(^{67}Ga)} = \frac{A(^{66}Ga)}{A(^{67}Ga)} \frac{[1-e^{-\lambda_{67}t}]}{[1-e^{-\lambda_{66}t}]} \qquad (17)$$

Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte dieser beiden Reaktionen wurde nach (17) mit den Daten aus [9] berechnet und ist in Abbildung 6 dargestellt. An diesem Bild kann nun für ein bestimmtes Verhältnis die Energie abgelesen und mit der aus dem Programm „STACK“ berechneten Energie verglichen werden. Durch Vergleich dieser beiden erhaltenen Energien, die gleich sein sollten, kann eine Aussage über die Qualität der mit dem Programm „STACK“ berechneten Energie gemacht werden.

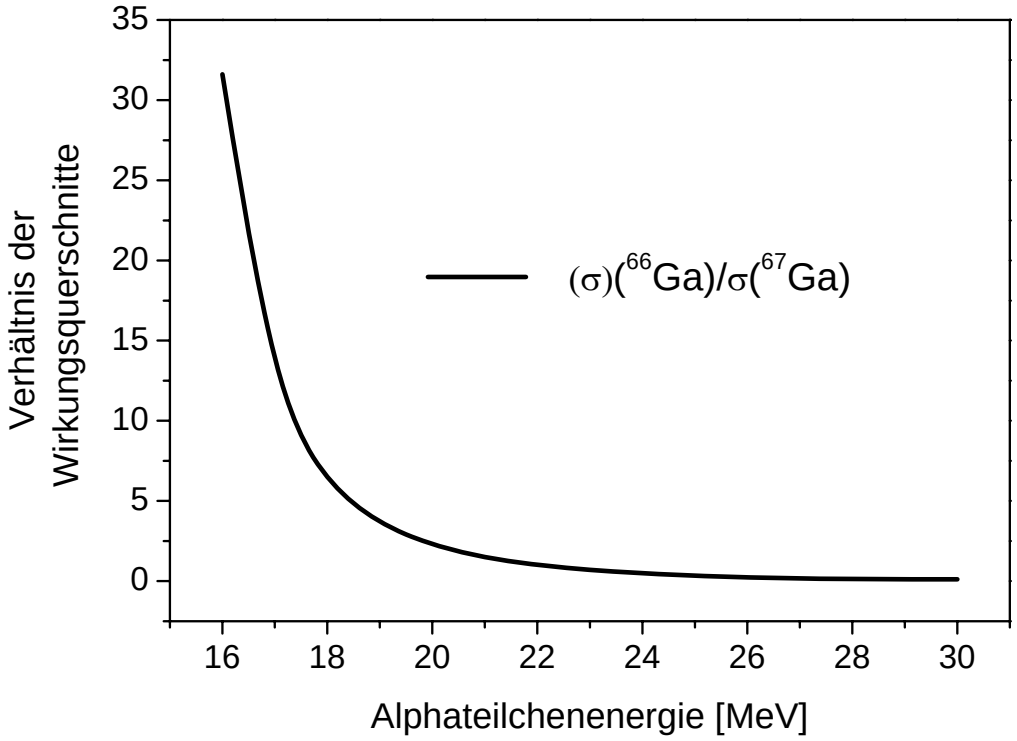

Abbildung 6: Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte der $^{nat}Cu(\alpha,x)^{66}Ga$ und der $^{nat}Cu(\alpha,x)^{67}Ga$ Reaktion

1.6.7 Berechnung des Wirkungsquerschnitts und dessen Unsicherheit

Liegen die Absolutaktivität bei EOB und der Projektilfluss vor, so kann mittels der Gleichung (11) der Wirkungsquerschnitt der betreffenden Reaktion bei der zugehörigen Energie berechnet werden. Sind viele dieser Wirkungsquerschnitte bei verschiedenen Projektilenergien bekannt, so kann die entsprechende Anregungsfunktion der Kernreaktion aufgestellt werden.

Die Unsicherheit des Wirkungsquerschnitts setzt sich aus den Einzelunsicherheiten der experimentellen Größen zusammen. Darunter fallen die Unsicherheit der Massenbestimmung, mögliche Inhomogenitäten in der Targetpräparation, Unsicherheiten in der Ermittlung der Ansprechwahrscheinlichkeiten des Detektors und der Peakflächenbestimmung sowie die Unsicherheiten der Bestimmung der chemischen Ausbeute und des Teilchenflusses. Des Weiteren weisen auch die Energiepunkte eine Unsicherheit auf, die aus der Unsicherheit in

der Primärenergie und der Berechnung der Energiedegradierung innerhalb des Folienstapels folgt. Bei der Teilchenflussbestimmung fließen alle Unsicherheiten außer den möglichen Targetinhomogenitäten und der Unsicherheit der chemischen Ausbeute mit ein, so dass sie bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte doppelt einfließen. Eine genaue Auflistung der Unsicherheiten und ihrer Größen erfolgt in Abschnitt 3.1.5 im experimentellen Teil.

1.7 Radiochemische Trennmethoden

Radiochemische Trennmethoden müssen den besonderen Anforderungen dieses Arbeitsgebiets genügen [cf. 11,12]. Der größte Unterschied zu anderen Arten der Chemie ist die niedrige Zahl der radioaktiven Atome, während die bestrahlten Matrixatome in viel größerer Anzahl vorliegen. Einige in der Chemie genutzte Methoden der Abtrennung können daher nicht zur Abtrennung von Radionukliden genutzt werden. So ist es im Allgemeinen, bei nicht zu hohen Aktivitäten oder Halbwertszeiten, nicht möglich, Fällungen zur Trennung des radioaktiven Materials einzusetzen. Möchte man diese Trennung dennoch einsetzen, so kann, falls möglich, unter Zusatz von isotopem oder nicht-isotopem Träger gearbeitet werden. Bei Zusatz von isotopem Träger wird die spezifische Aktivität heruntergesetzt. Grundsätzlich gilt jedoch, dass alle Methoden der klassischen Chemie auch in der Radiochemie anwendbar sind. Als Trennmethoden stehen also neben den Fällungsreaktionen die Solventextraktion, chromatographische Verfahren wie Ionenaustauschchromatographie, Verflüchtigungsmethoden oder elektrochemische Verfahren zur Verfügung. Zudem finden neuere Methoden wie z. B. Rückstoßmethoden oder die Massenseparation immer mehr Anwendung in der Radiochemie. Die in dieser Arbeit verwendeten Trennmethoden Solventextraktion und Ionenaustauschchromatographie werden in den nächsten Abschnitten genauer dargestellt [cf. auch 12].

1.7.1 Solventextraktion

Bei der Solventextraktion wird das zu extrahierende Produkt zwischen zwei flüssigen Phasen verteilt. Dies sind zumeist eine wässrige und eine organische Phase, bei dem Produkt handelt es sich zumeist um eine in wässriger Phase ionisch vorliegenden Spezies. In einer Phase reichert sich das zu extrahierende Produkt an, so dass auf diese Weise mit mehreren

aufeinander folgenden Extraktionen eine Trennung des Produkts von den nicht gewünschten Nebenprodukten erreicht werden kann.
Über die Qualität einer Trennung gibt das Verteilungsverhältnis D Auskunft (18):

$$D = \frac{(C_A)_1}{(C_A)_2} \tag{18}$$

C_A steht für die Konzentration des zu extrahierenden Produkts in der jeweiligen Phase (1 oder 2). Meist wird mit 1 die organische Phase und mit 2 die wässrige Phase bezeichnet. Je größer das Verteilungsverhältnis, desto besser ist die Trennung. Man unterscheidet zwei Arten der Solventextraktion. Es kann ein Produkt als Ionenaggregat aus der wässrigen Phase, in der es als Ion vorlag, in die organische Phase extrahiert werden. Ein Beispiel für diesen Fall ist die Extraktion von Fe als $FeCl_3$ aus salzsaurer Lösung in Diethylether. Des Weiteren kann das Produkt auch in einem neutralen Chelatkomplex in die organische Phase extrahiert werden. Der Chelatbildner ist dabei zumeist in der organischen Phase gelöst. Wichtige Parameter der Solventextraktion sind Konzentration der zu extrahierenden Produkte und Nebenprodukte, Konzentration des Chelatbildners, Temperatur, pH-Wert der wässrigen Phase, sowie Extraktionszeit und Verhältnis der beiden wässrigen Phasen.

Bei der Nutzung dieser Methode in der Radiochemie handelt es sich bei den Produkten in der Regel um Radionuklide, die von den Nebenprodukten und dem bestrahlten Target abgetrennt werden sollen. Diese Methode bietet den Vorteil, dass sie sehr schnell mit makroskopischen und Tracermengen durchgeführt werden kann und Chelatbildner eine gewisse Selektivität für eine Gruppe von Metallionen aufweisen, die durch die experimentellen Bedingungen (Zeit, Temperatur, pH-Wert, Wertigkeit des zu extrahierenden Produkts, Hinzufügen maskierender Agentien etc.) noch gesteigert werden kann.

1.7.2 Ionenaustauschchromatographie

Die gebräuchlichste Form eines Ionenaustauschers besteht aus synthetischen organischen Polymeren, in deren Gerüst Fest-Ionen eingebaut sind, die zu verschiedenen Ionen eine unterschiedliche Affinität aufweisen. Dieser Aufbau wird als Kunstharz bzw. engl. „resin“ bezeichnet. Verwendung finden dabei sowohl Anionenaustauscher, die zumeist eine quartäre

Ammoniumgruppe der Form $-NR_3^+$ aufweisen, als auch Kationenaustauscher, die als Fest-Ionen meist eine Sulfonatgruppe der Form $-SO_3^-$ nutzen. Die Funktionsweise eines Ionenaustauschers besteht darin, dass sich beim Stoffaustausch, d.h. beim Ersatz der Gegenionen eines Ionenaustauschers (H^+ bei einem Kationenaustauscher bzw. OH^- bei einem Anionenaustauscher), ein Gleichgewicht ausbildet. Die Gleichgewichtskonstante ist für alle Ionen unterschiedlich, so dass eine Trennung möglich wird. Da diese Unterschiede jedoch nicht sehr groß sind, müssen viele dieser Austauschreaktionen hintereinander durchgeführt werden (bis zu mehreren tausend Mal), um zu einer praktikablen Trennmethode zu führen. Zudem sollte die Einstellung der Komplexbildungsgleichgewichte schnell erfolgen, was durch dünne austauschaktive Schichten und einen säulenförmigen Aufbau des Kunstharzes erreicht wird. Mit Solventien, die mit den zu trennenden Ionen Komplexe unterschiedlicher Stabilität ausbilden, erfolgt das Loslösen der Ionen von der Säule. Auch die Komplexbildungskonstante mit diesen Solventien unterscheidet sich für die verschiedenen Ionen, so dass durch eine Abstimmung dieser beiden Effekte aufeinander eine gute Trennung erreicht werden kann.

Die Ionenaustauschgraphie ist für makroskopische Mengen, aber auch mit den nicht wägbaren Mengen, die in der Radiochemie auftreten, geeignet. Besonders für eine radionuklidische und chemische Endreinigung, wie sie für die medizinische Anwendung nötig ist, eignet sich diese Trennmethode gut.

1.8 Radiotherapie

Bei der Radio- oder Strahlentherapie wird die therapeutische Wirkung durch die Zerstörung von Gewebe mit Hilfe der Strahlung von Radionukliden oder Beschleunigern erzeugt. Neben vielen Formen des Krebses können auch andere Beschwerden, beispielsweise Gelenkerkrankungen, behandelt werden. In diesen Fällen wird zumeist palliativ therapiert.
Nach dem Einsatzort der Radionuklide unterscheidet man externe, Brachy- und interne (Endo-)Radiotherapie.

Bei der externen Radiotherapie befindet sich das Radionuklid bzw. die Strahlenquelle (z. B. Beschleuniger) außerhalb des Körpers. Abhängig von der Strahlung wird die therapeutische Wirkung durch verschiedene Effekte ausgelöst. Die γ–Strahlung verursacht ihre

therapeutische Wirkung durch die Erzeugung von Radikalen, besonders Radikale von Sauerstoff. Diese Art der Therapie ist damit am wirkungsvollsten, wenn das zu behandelnde Gewebe einen hohen Sauerstoffumsatz hat, also stark durchblutet ist. Wird korpuskulare Strahlung extern eingesetzt, so nutzt man den Effekt, dass geladene Teilchen erst am Ende ihres Weges in Materie den Großteil ihrer Energie im so genannten Bragg-Peak verlieren. Durch die entsprechenden Einstellungen wird der Bragg-Peak in das zu behandelnde Gewebe gelegt.

Bei der Brachytherapie werden Radionuklide in den Körper eingebracht, befinden sich jedoch in festen Grenzen innerhalb eines festgelegten Volumens. Man unterscheidet interkavitäre Brachytherapie, die bestehende Hohlräume in der Nähe des zu behandelnden Gewebes ausnutzt, und interstitielle Brachytherapie, bei der die verschlossenen Strahler in das zu bestrahlende Gewebe gebracht werden [13]. Als Beispiele für den Einsatz von Radionukliden in der Brachytherapie dienen ^{103}Pd, das in dünnen Goldnadeln zur Bekämpfung von Prostatakrebs in das Gewebe eingebracht wird oder ^{192}Ir, das direkt als aktivierter, dünner Draht in das zu bestrahlende Gewebe eingeführt wird. Bei dieser Art der Strahlentherapie werden andere Arten der radioaktiven Strahlung eingesetzt als bei der externen Therapie. Zur Gewährleistung einer hohen Selektivität benötigt man hier einen hohen linearen Energietransfer (LET), d. h. es finden Nuklide ihre Anwendung, deren wirksame Strahlung auf kurze Entfernung ihre Energie verliert (niederenergetische β^--Strahler, α-Strahler und Konversions- und Auger-Elektronenemitter).
Bei der internen Strahlentherapie schließlich ist das Ziel, dass der Metabolismus des Patienten das Therapienuklid in der entsprechenden chemischen Form an die Wirkstätte bringt. Als Beispiel für diesen Fall dient ^{131}I, welches in Iodidform als NaI oral verabreicht und vom Metabolismus selektiv in die Schilddrüse transportiert wird. Diese Form der Strahlentherapie ist so selektiv, dass sogar metastatierte Schilddrüsenzellen auf Grund ihrer Funktionsweise ^{131}I aufnehmen und dadurch zerstört werden. Die Selektivität dieser Form der Strahlentherapie macht sie schonender, wenn erstens das Radionuklid neben der therapeutischen Strahlung möglichst keine begleitende Strahlung aufweist und zweitens ein selektives chemisches Vehikel existiert, das dieses Radionuklid nur in das zu behandelnde Gewebe einbaut. Auch für die interne Radiotherapie sind Radionuklide mit hohem LET besonders interessant. Die Reichweite verschiedener Strahlung im Gewebe ist schematisch in Abbildung 7 dargestellt [entnommen aus 14]. Therapienuklide und deren Anwendung haben

in letzter Zeit erhöhte Aufmerksamkeit erlangt [cf. 14–20]. Die in der Therapie etablierten Nuklide werden meist am Kernreaktor erzeugt. Eine Übersicht über Produktionsmethoden dieser Nuklide gibt Tabelle 2 [entnommen aus 20].

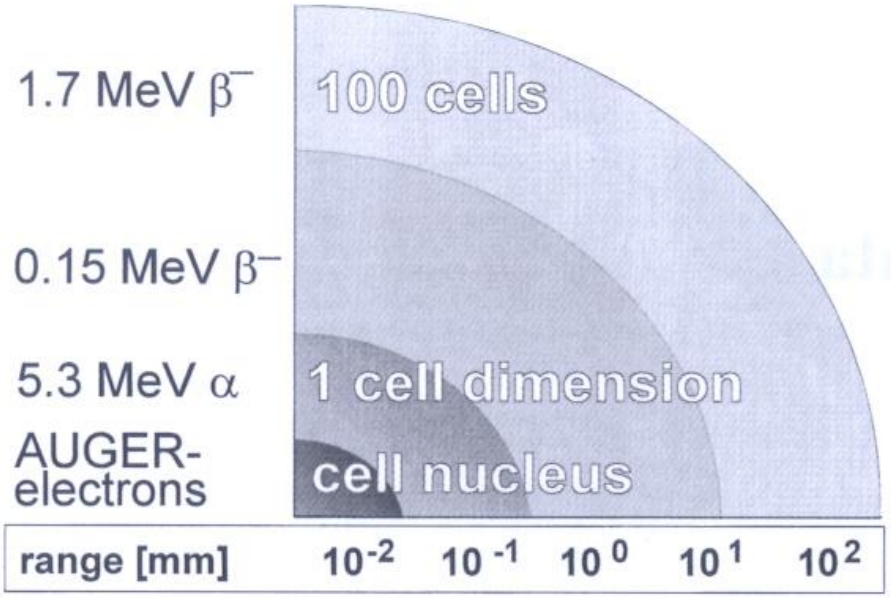

Abbildung 7: Reichweite verschiedener Strahlungsarten im Gewebe [14]

Tabelle 2: Übersicht über die Produktionsmöglichkeiten von etablierten Therapienukliden [20]

Radio-nuklid	$T_{½}$	E_{max} des emittierten Teilchens	E_γ in keV (I_γ in %)	Produktionsroute	Wirkungsquerschnitt in mb und Bemerkungen[a,b]
			β^-–Emitter		
^{32}P	14,3 d	1,7 (β^-)		^{32}P(n,γ)	160
				^{32}S(n,p)	70
^{67}Cu	2,6 d	0,6 (β^-)	185 (45)	^{67}Zn(n,γ)	1,07
				RbBr(p,spall)	1,6 bei 800 MeV
				^{68}Zn(p,2p)	10,0 bei 71 MeV
^{89}Sr	50,5 d	1,5 (β^-)		^{88}Sr(n,γ)	5,8
				^{89}Y(n,p)	0,31
^{90}Y	2,7 d	2,3 (β^-)		^{89}Y(n,γ)	1250
				^{235}U(n,f)^{90}Sr	Y_{cum} = 5,89 %
				^{90}Sr → ^{90}Y Generator (28,6 a)	
^{111}Ag	7,5 d	1,0 (β^-)	342 (6)	^{110}Pd(n,γ) ^{111m,g}Pd → ^{111}Ag (5,5 h; 23,4 min)	733
^{131}I	8,0 d	0,6 (β^-)	364 (81)	^{130}Te(n,γ)^{131m,g}Te → ^{131}I (25 min; 1,3 d)	230
				^{235}U(n,f)^{131}I	Y_{cum} = 2,84 %
^{153}Sm	1,9 d	0,8 (β^-)	103 (28,3)	^{152}Sm(n,γ)	206000
^{166}Ho	1,1 d	1,8 (β^-)	81 (6,2)	^{165}Ho(n,γ)	61000
				^{164}Dy(n,γ)^{165}Dy(n,γ)^{166}Dy (2,4 h)	(2,0; 3,5) x 10^6
				^{166}Dy → ^{166}Ho Generator (3,4 d)	
^{177}Lu	6,7 d	0,5 (β^-)	208 (11)	^{176}Lu(n,γ)	1,78 x 10^6
^{186}Re	3,8 d	1,1 (β^-)	137 (8,5)	^{185}Re(n,γ)	114000
				^{186}W(p,n)	100 bei 10 MeV[c]
				^{186}W(d,2n)	430 bei 13 MeV[c]
^{188}Re	17 h	2,0 (β^-)	155 (14,9)	^{186}W(n,γ)^{187}W(n,γ)^{188}W (23,7 h)	36000; 70000
				^{188}W → ^{188}Re Generator (69,0 d)	
			α-Emitter		
^{211}At	7,2 h	5,9 (α)		^{209}Bi(α,2n)	825 bei 28 MeV[c]
(^{211}Po)	(0,52 s)	7,5 (α)			
^{213}Bi	46 min	5,9 (α)	440 (16,5)	Generator aus ^{225}Ac (siehe unten)	radioaktiver Abfall
		1,4 (β^-)			
(^{213}Po)	(4,2 µs)	8,3 (α)			
^{225}Ac	10,0 d	5,8 (α)	100 (1,7)	^{229}Th → ^{225}Ac (7880 a)	radioaktiver Abfall
				^{225}Ra → ^{225}Ac (14,8 d)	
				^{226}Ra(p,2n)	nicht bekannt
			Auger-Elektronenemitter und Röntgenstrahler		
^{67}Ga	3,3 d	Auger-Elektronen	93 (37)	^{67}Zn(p,n)	640 bei 11 MeV[c]
				^{68}Zn(p,2n)	727 bei 20 MeV[c]
^{103}Pd	17,0 d	Auger-Elektronen		^{103}Rh(p,n)	600 bei 10 MeV[c]
				^{nat}Ag(p,x)	40 bei 28 MeV[c]
^{111}In	2,8 d	Auger-Elektronen	245 (94)	^{111}Cd(p,n)	791 bei 12 MeV[c]
				^{112}Cd(p,2n)	1025 bei 19 MeV[c]
^{125}I	60,1 d	Auger-Elektronen	35 (6,7)	^{124}Xe(n,γ) ^{125}Xe → ^{111}Ag (16,9 h)	165000

Fortsetzung von Tabelle 2:

a: Neutroneneinfangdaten für thermische Neutronen; (n,p) Wirkungsquerschnitte sind über das Spaltneutronenspektrum gemittelt.
b: Der Wirkungsquerschnitte für Reaktionen mit geladenen Teilchen ist für eine geeignete Energie angegeben.
c: Für diese Reaktionen ist die gesamte Anregungsfunktion bekannt.

Die in dieser Arbeit behandelten Radionuklide haben Eigenschaften, die sie für die Brachy- bzw. interne Radiotherapie interessant machen.

1.9 Verwendungsform der in dieser Arbeit untersuchten Nuklide

Die in dieser Arbeit behandelten Nuklide werden auf unterschiedliche Weise und in verschiedenen Formen zur Therapie eingesetzt, die auf deren Strahlungsarten und chemische Eigenschaften beruhen.

^{140}Nd

^{140}Nd ($T_{½}$ = 3,37 d, 100 % EC, keine γ-Strahlung) ist als Lanthanoid dafür vorgesehen, in bereits bekannte Verbindungen anderer Radionuklide dreiwertiger Elemente, beispielsweise ^{111}In, ^{68}Ga oder ^{90,86}Y, eingesetzt zu werden [cf. 14,20,21]. Unter diesen tun sich besonders solche von Peptiden wie Octreotid, einem synthetischen Analogon des Somastotatin hervor, an die Radionuklide dreiwertiger Elemente mit Linkern wie beispielsweise Diethylentriaminpentaessigsäure (DTPA) gebunden werden sollen. Für das Radionuklid ^{111}In (ein Auger-Elektronenemitter) gibt es Hinweise darauf, das das auf die beschriebene Weise mit Octreotid verbundene Radionuklid über einen Transportmechanismus in den Zellkern oder dessen Nähe gelangt, da der gefundene Therapieeffekt nicht durch die schwache γ-Strahlung dieses Nuklids hervorgerufen werden kann [22]. Mit Hilfe dieser Peptide soll das Nuklid ^{140}Nd als Auger-Elektronenemitter in die Nähe des Zellkerns gebracht werden [21], da die kurze Reichweite dieser Elektronen nur dort eine therapeutische Wirkung zulässt. Darauf beruht andererseits aber auch die selektive Wirkung dieses Nuklids. Des Weiteren zerfällt das kurzlebige Tochternuklid ^{140}Pr (T_2 = 3,4 min) zu 51% durch β^+-Zerfall, was die Quantifizierung von Dosimetrie sowie die Aufklärung der Kinetik und des Verbleibs des Pharmakons im Körper mittels PET ermöglichen sollte. ^{140}Nd soll demnach zur internen oder

Endoradiotherapie eingesetzt werden.

^{192}Ir

^{192}Ir ($T_{½}$ = 78,83 d, EC = 5 %, $I_{\beta-}$ = 95 %, $E_{\beta-}$ = 0,7 MeV) ist ein für die Brachytherapie wichtiges Radionuklid und wird dort im großen Maßstab eingesetzt. Dieses Nuklid findet Anwendung in verschiedenen Formen [cf. 23]. Es kann in Form von Na_2IrCl_6 als verschlossene Quelle oder als dünner aktivierter Ir-Draht eingesetzt werden und wird direkt in das zu bestrahlende Gewebe eingebracht.

^{193m,195m}Pt

^{193m}Pt ($T_{½}$ = 4,33 d, IT = 100 %, keine γ-Strahlung, Spin $13/2^+$) und ^{195m}Pt ($T_{½}$ = 4,03 d, IT = 100 %, E_γ = 98,9 keV, I_γ = 11,4 %, Spin $13/2^+$) können in Form klinisch erprobter Platinkomplexe eingesetzt werden [cf. 24]. Die entsprechenden Grundzustände sind ^{193}Pt ($T_{½}$ = 50 a, EC = 100 %, keine γ-Strahlung, Spin $½^-$) und ^{195}Pt (stabil, Spin $½^-$). Als Konversionselektronenstrahler, die außerdem hohe Auger-Elektronenemissionswahrscheinlichkeiten aufweisen, müssen diese Komplexe in den Zellkern eingebracht werden (siehe Kapitel Platinkomplexchemie). Die im genannten Kapitel beschriebenen Platinkomplexe können mit diesen beiden Nukliden markiert werden und so die schonende Wirkung eines selektiven Strahlers entfalten. Auf Grund der Toxizität dieser Verbindungen muss auf eine hohe spezifische Aktivität geachtet werden. In den gleichen Verbindungen kann auch ein weiteres Platinradionuklid, ^{191}Pt ($T_{½}$ = 2,8 d, 100% EC), eingesetzt werden [cf. 24,25]. Dieses Nuklid wird auch als Auger-Elektronenemitter verwendet, weist jedoch viele begleitende γ-Linien auf. Des Weiteren hat dieses Nuklid auch eine gewisse Bedeutung bei Umweltstudien [cf. 26].

1.10 Aspekte der Komplexchemie des Platins

Platin ist als komplexbildendes Element aus mehreren Gründen für die Pharmakologie interessant. Platin weist nur zwei stabile Oxidationsstufen, nämlich II und IV, auf. Komplexe auch mit organischen Liganden sind lange bekannt. Die Komplexchemie ist daher einfach und leicht handhabbar und die Synthese von Platinkomplexen mit organischen Liganden nicht auf

Grund vieler Oxidationsstufen uneindeutig, sondern beherrschbar. Für den Einsatz in der Pharmazie sind verschiedene Platinkomplexe interessant, die anti-Tumorwirkung aufweisen. Hierbei tun sich besonders die schon seit langem in der klinischen Routine eingesetzten Komplexe cis-Platin (cis-DDP) und Carboplatin hervor, die Erfolge in der Bekämpfung von verschiedenen Krebsarten (z.B. Hoden, Eierstöcke, Blase, Kopf) erzielt haben [cf. 27-29]. Auch andere Komplexe dieses Elements, sogar in der lange Zeit als unwirksam erachteten trans-Geometrie [cf. 30-32], haben Wirksamkeit bei der Bekämpfung von Krebs bewiesen.
Die Wirkungsweise der Komplexe (nach [29]) in der cis-Geometrie beruht auf einer Verbindung mit den Stickstoffbasen der DNA. Nach der Aufnahme in die Zelle wird cis-Platin an den Chlorstellen hydrolysiert. Nach der Hydrolyse geht der Aqua-Komplex mit den freien N7-Stickstoffatomen eine so genannte 1,2 Intrastrangverbindung ein, d. h. die Bindung erfolgt innerhalb eines Stranges der DNA. Dadurch verändert sich die Geometrie der DNA. Die Stapelung der Nukleobasen wird aufgehoben, außerdem wird die helikale Struktur aufgebrochen, die DNA knickt. Verschiedene Mechanismen wie Transkription und Zellreparatur funktionieren nicht mehr. Die betroffene Zelle stirbt.

Da diese Verbindungen jedoch stark toxisch sind, ergeben sich leicht die aus der Chemotherapie bekannten Nebenwirkungen. Zudem können Zellstörungen bis hin zu Nekrosen auftreten. Andere Anwendungsmöglichkeiten dieser bewährten Komplexe wurden daher in der Radiopharmazie gesucht. Könnten diese Verbindungen mit hoher spezifischer Aktivität eines Radionuklids mit hohem LET markiert werden, so entfielen auf Grund der niedrigen Masse die Nebenwirkungen. Durch die Interkalationsverbindungen mit der DNA können auf diese Weise Tumorzellen selektiv zerstört werden. Außerhalb des Zellkerns, in dem sich die DNA befindet, würde bei Verwendung neuer Auger- oder Konversions-elektronen kaum Strahlung zur Wirkung kommen.

1.11 Produktionsmethoden der in dieser Arbeit behandelten Radionuklide

^{140}Nd kann nur an einem Zyklotron produziert werden. Es bieten sich die ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd und die ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd Reaktionen an. Während zur ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd Reaktion systematische Daten vorliegen [33,34], wurden bisher keine Kernreaktionsdatenmessung der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd Reaktion durchgeführt. Beide Reaktionen sind jedoch zur Produktion von

^{140}Nd eingesetzt worden [21,34].

Für die Produktion von ^{192}Ir bieten sich Reaktionen an hochangereichertem ^{192}Os an. Weder die protonen- noch die deuteroneninduzierte Reaktion an diesem Targetmaterial ist in der Literatur beschrieben. Die protoneninduzierte Reaktion an diesem Nuklid wurde in dieser Arbeit untersucht.
Die Radionuklide ^{192}Ir und ^{195m}Pt werden am Kernreaktor durch (n,γ)-Reaktionen aus natürlichem Iridium bzw. aus hochangereichertem ^{194}Pt als Target produziert [35,36]. Durch diese Produktionsmethode ist die spezifische Aktivität stark limitiert, da das stabile Targetmaterial vom aktivierten Produkt nicht chemisch abgetrennt werden kann. Für ^{192}Ir entsteht daraus auf Grund der Art des Einsatzes dieses Nuklids in der Brachytherapie kaum ein Nachteil. Nur die untere Grenze der Probengröße ist limitiert. Sollte dieses Nuklid jedoch Anwendung in der Endoradiotherapie finden, ist es wichtig, eine Methode zur Produktion zu benutzen, die eine hohe spezifische Aktivität ermöglicht.

Für den Einsatz der in Abschnitt 1.9 genannten Platinisotope ist es jedoch erforderlich, diese Nuklide in hoher spezifischer Aktivität zu produzieren. Die beiden Nuklide ^{193m}Pt und ^{195m}Pt sind zudem isomere Zustände mit einem hohen Spin. Um diesen hohen Drehimpuls bei einer Kernreaktion zu übertragen, sollten schwerere geladene Teilchen wie ^{3}He- oder α-Teilchen besser geeignet sein. Diese Reaktionen sind in der Literatur bisher nicht systematisch untersucht worden.

Für die Produktion von ^{193m}Pt und^{195m}Pt an einem Zyklotron stehen mehrere Reaktionskanäle offen:

- ^{193}Ir(p,n)^{193m}Pt oder ^{193}Ir(d,2n)^{193m}Pt an hochangereichertem ^{193}Ir
- ^{192}Os(^{3}He,2n)^{193m}Pt oder ^{192}Os(α,3n)^{193m}Pt an hochangereichertem ^{192}Os.
- ^{192}Os(α,n)^{195m}Pt an hochangereichertem ^{192}Os.

Die letztgenannten Reaktionen wurden im Rahmen dieser Arbeit untersucht.

1.12 Eigenschaften der untersuchten Nuklide

Neben den eigentlichen Zielnukliden wurden auch andere, zumeist isotope Nuklide, untersucht und deren Wirkungsquerschnitte bestimmt. Für eine Produktionsmethode können so u. a. die isotopen Verunreinigungen dieser Methode bestimmt werden. In den Tabellen 3 und 4 ist eine Übersicht über die untersuchten Nuklide zu finden. Tabelle 3 enthält die Nuklide, die an Cer- und Praseodymoxid untersucht wurden, Tabelle 4 gibt einen Überblick über die an Osmium gemessenen Nuklide.

Tabelle 3: Untersuchte Nuklide und ihre Eigenschaften [nach 1] gebildet aus Cer- und Praseodymoxid

Untersuchtes Nuklid	Halbwertszeit	γ-Linie, die für die Aktivitäts-bestimmung genutzt wurde [keV]	Intensität [%]
^{141}Nd	2,5 h	511	5,0
		1127	0,8
^{140}Nd	3,37 d	511 (Zerfall der Tochter ^{140}Pr)	101,6
^{139g}Nd	29,7 min	405	6,9
^{139m}Nd	5,5 h	708	26,0
		739	35,0
^{139g}Ce	137,6 d	166	79,9

Tabelle 4: Untersuchte Nuklide und ihre Eigenschaften [nach 1] gebildet aus angereichertem ^{192}Os

Untersuchtes Nuklid	Halbwertszeit	γ-Linie, die für die Aktivitäts-bestimmung genutzt wurde [keV]	Intensität [%]
^{192}Ir	78,83 d	317	82,8
		468	47,8
^{190}Ir	11,8 d	558	30,0
		605	39,9
^{195m}Pt	4,03 d	66,8 (Röntgenlinie Pt $K_{\alpha 1}$)	39,0
		98,9	11,4
^{193m}Pt	4,33 d	66,8 (Röntgenlinie Pt $K_{\alpha 1}$)	7,4
^{191}Pt	2,8 d	539	13,4
		360	6,0

Die Bildung dieser Nuklide bei der Wechselwirkung verschiedener Teilchen mit den Target-materialien wurde anhand der angegebenen Strahlung bestimmt.

Bei den Reaktionen, die zu den Platinisotopen führen, wurde zudem die Produktion dieser Nuklide nach den entsprechenden Reaktionen untersucht. Dies beinhaltete neben der Bestimmung der Kernreaktionsdaten die Herstellung geeigneter Targets für hohe Strahlströme und eine effiziente Abtrennung des Platin von allen Verunreinigungen.

2 Problemstellung

Auf Grund ihrer Eigenschaften sind die in der Einleitung genannten Radionuklide ^{140}Nd, ^{192}Ir, ^{191}Pt, ^{193m}Pt und ^{195m}Pt als Therapienuklide entsprechend ihrer jeweiligen Anwendungsmöglichkeit in der Krebstherapie einsetzbar. Daher ist es wichtig, zuverlässige Produktionsverfahren dieser Nuklide sicherzustellen und auch neue Produktionsmöglichkeiten zu untersuchen, um die optimale Methode, was Ausbeute und Reinheit anbetrifft, zu finden.

Der Auger-Elektronenemitter ^{140}Nd soll für die Endoradiotherapie eingesetzt werden, wie in Abschnitt 1.9 beschrieben. Daher besteht das Anliegen, dieses Nuklid in hoher Reinheit und Ausbeute zu produzieren. Wie in der Einleitung ausgeführt, sind die Produktion und Trennung dieses Nuklids von den Targetmaterialien Cer(IV)oxid bzw. Praseodymoxid schon in der Literatur beschrieben und die ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd Reaktion schon systematisch untersucht worden. Die erhaltenen Daten aus diesen Untersuchungen stimmen jedoch nicht miteinander überein. Zu einem Vergleich der beiden Methoden fehlte jedoch bisher die systematische Untersuchung der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd Reaktion und deren Nebenreaktionen. In dieser Arbeit sollen daher beide Reaktionen im Hinblick auf Ausbeute und isotope Verunreinigung systematisch untersucht werden. Ziel ist es hier, zu den jeweiligen Reaktionen genaue, systematische Kernreaktionsdaten zu ermitteln. Diese sollen weiterhin mit den Ergebnissen von Kernmodellrechnungen mit Hilfe des ALICE-IPPE Rechencodes verglichen werden.

Der Betastrahler ^{192}Ir ist ein in der Strahlentherapie weit verbreitetes Nuklid und wird dort in der Brachytherapie eingesetzt. Dieses Nuklid wird in Routine an einem Kernreaktor produziert, allerdings entsprechend nur mit relativ niedriger spezifischer Aktivität. Um eine höhere spezifische Aktivität zu erhalten, soll der Weg über die ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion systematisch untersucht werden. Theoretische Wirkungsquerschnitte, berechnet mit den Rechencodes EMPIRE II und ALICE-IPPE, sollen mit den experimentellen Daten verglichen werden, um festzustellen, welcher Rechencode die experimentellen Daten besser wiedergibt.

^{193m}Pt und ^{195m}Pt sind ebenfalls Auger-Elektronenemitter. Da ^{195m}Pt bisher an einem Kernreaktor produziert wurde, ist die spezifische Aktivität dieses Nuklids begrenzt. Beide metastabilen Zustände haben hohe Kernspins, daher wären eventuell Kernreaktionen mit Teilchen höheren Drehimpulses besser zur Produktion dieser Nuklide geeignet. Ziel ist es daher, die Produktion von ^{193m}Pt und ^{195m}Pt durch Bestrahlung von hochangereichertem ^{192}Os mit ^{3}He- und α-Teilchen zu untersuchen. Zu diesen Reaktionen liegen bisher keine systematischen Daten vor. Da beide Nuklide nur über schwache γ-Linien bzw. Röntgenlinien verfügen, ist zur Messung der Aktivität dieser Nuklide die Anwendung von radiochemischen Trennmethoden unbedingt notwendig. Die Produktionsdaten von ^{193m}Pt und ^{195m}Pt dieser Arbeit sollen mit anderen Produktionsmethoden für diese Nuklide verglichen werden.

Im Rahmen dieser Studie soll die Bildung von ^{191}Pt mituntersucht werden, da dieses wie oben ausgeführt ein für Umweltstudien interessantes Nuklid ist und außerdem ebenfalls in der Medizin als Therapienuklid von Interesse ist.

Darüber hinaus ist es ein weiteres Ziel dieser Arbeit, eine Methode zur Produktion des Radionuklids ^{195m}Pt in größeren Mengen und mit hoher spezifischer Aktivität zu entwickeln. Dazu soll ein Bestrahlungstarget entwickelt werden, das hohen Strahlströmen standhalten kann. Zudem ist auch ein radiochemisches Verfahren zu entwickeln, um nach der Bestrahlung des angereicherten ^{192}Os die gebildeten Platinnuklide in hoher Ausbeute und Reinheit abtrennen zu können. Ferner soll das ^{192}Os zurückzugewinnen sein, um dieses wiederverwenden zu können. Die Qualität des abgetrennten Radioplatins muss den Anforderungen für medizinische Anwendungen genügen.

3 Experimenteller Teil

3.1 Kerndatenmessungen

Zur Produktion von ^{140}Nd wurden die Reaktionen ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd und ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd untersucht. Für beide Reaktionen wurden auch die isotopen Verunreinigungen gemessen. Außerdem wurden die kumulativen Wirkungsquerschnitte zur Bildung des Radionuklids ^{139}Ce, ausgehend von den oben genannten Targetmaterialien bestimmt. Am angereicherten ^{192}Os wurden einerseits Wirkungsquerschnitte zur Produktion von ^{192}Ir mit Protonen und andererseits zur Produktion der Platinnuklide ^{195m}Pt, ^{193m}Pt und ^{191}Pt mit ^{3}He- sowie mit Alphateilchen gemessen. Im Einzelnen wurden folgende Reaktionen untersucht:

Tabelle 5: In dieser Arbeit untersuchte Kernreaktionen

An Cer(IV)oxid	An Praseodym(III)oxid	An Osmium (angereichertes Isotop 192)
^{nat}Ce (^{3}He,xn)^{141}Nd	^{141}Pr(p,n)^{141}Nd	^{192}Os(p,n)^{192}Ir
^{nat}Ce (^{3}He,xn)^{140}Nd	^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd	^{192}Os(^{3}He,2n)^{193m}Pt
^{nat}Ce (^{3}He,xn)^{139}Nd	^{141}Pr(p,3n)^{139}Nd	^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt
^{nat}Ce(^{3}He,x)^{139}Ce	^{141}Pr(p,x)^{139}Ce	^{192}Os(α,n)^{195m}Pt
		^{192}Os(α,3n)^{193m}Pt

3.1.1 Herstellung der dünnen Bestrahlungsproben

Für die Herstellung von dünnen Targets zur Messung von Kernreaktionsdaten eignen sich besonders Metallfolien niedriger Dicke. Im Fall von Cer waren jedoch Metallfolien dieser Dicken (etwa bis zu 25 µm) nicht erhältlich. Zudem sind sowohl Cer als auch Praseodym sehr reaktive Metalle, so dass die chemische Eindeutigkeit durch Oxidation gefährdet war. In beiden Fällen wurden dann Oxide der jeweiligen Metalle (Cer(IV)oxid und Praseodym(III)oxid in hoher Reinheit (99,999 %) und natürlicher Isotopenzusammensetzung) als die entsprechenden Targetmaterialien verwendet. Um diese Oxide in dünnen Schichten zu

erhalten, wurden sie aus einer Suspension sedimentiert. Eine detaillierte Übersicht zu dieser Methode findet sich im nächsten Abschnitt.

Für die Messung von Wirkungsquerschnitten am Targetmaterial Osmium konnten ebenfalls keine dünnen Metallfolien genutzt werden, da Osmium sehr hart, aber spröde ist und keine Osmiumfolien zur Verfügung standen. Zudem sollte angereichertes ^{192}Os (84,5 %) verwendet werden. Eine geeignete Möglichkeit, Metalle in dünnen Schichten für Bestrahlungen vorzubereiten, ist die elektrolytische Abscheidung auf eine andere Metallfolie („Backing“). Diese Methode fand entsprechend in diesem Fall Anwendung, besonders, da sie auch für angereichertes Material geeignet ist. Als geeignetes Backing erwies sich Nickel, da besonders Kupfer und Titan zu stark aktivieren und Aluminium sowie Niob unter den Elektrolysebedingungen chemisch angegriffen werden. Eine detaillierte Übersicht zu dieser Methode findet sich im Abschnitt 3.1.1 b).

3.1.1 a) Sedimentation

Zur Herstellung dünner Bestrahlungsproben für die Bestimmung von Kernreaktionsdaten wurden die im vorigen Abschnitt genannten Oxide des Cers und Praseodyms auf dünne Metallfolien (so genannte („Backings“) sedimentiert [cf. 37,38]. Als Backing dienten hochreine Kupferfolien (> 99,6 %, Durchmesser 13 mm) der Stärke 25 µm und in einigen speziellen Fällen Aluminiumfolien gleicher Reinheit und gleichen Durchmessers, aber höherer Dicke (200 µm). Die letzteren erwiesen sich bei den Messungen jedoch als ungeeignet. Dazu wurden die sehr fein gepulverten Oxide in Aceton hoher Reinheit (99,7 %) suspendiert. Im Falle des Cer(IV)oxids wurde zusätzlich etwa 4 – 5 % Nitrocellulose (99 %) in dieser Suspension gelöst, um die mechanische Stabilität der Schichten zu erhöhen. Die so erhaltenen Suspensionen wurden in eine speziell zu diesem Zweck angefertigte Sedimentationszelle verbracht, die in Abbildung 8 dargestellt ist. Diese Zelle besteht aus einer geschlossenen Teflonscheibe, die als „Boden“ dient. Auf diesen „Boden“ wird das Backing gelegt. Auf diese wiederum wird eine weitere Teflonscheibe befestigt, die eine 10 mm durchmessenden Aussparung aufweist. In diese Aussparung werden ca. 500 µL der vorbereiteten Suspension der Oxide möglichst schnell eingefüllt. Die Sedimentationszeit betrug etwa 2 bis 5 min, zusätzlich dauerte es bis zu 5 h bis die Verdunstung des Acetons abgeschlossen war.

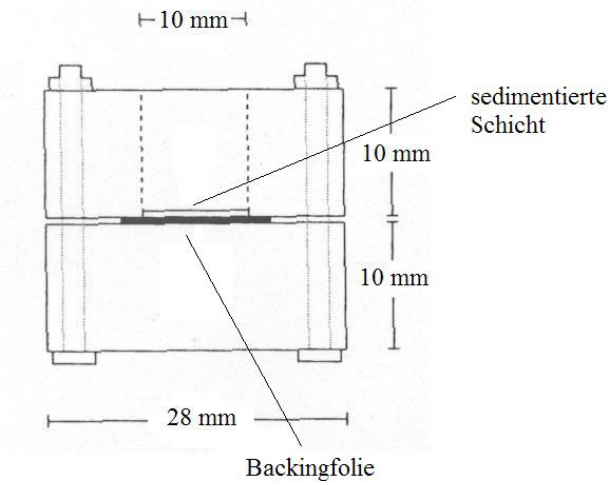

Abbildung 8: Aufbau der Sedimentationszelle nach [37]

Die Qualität der so erhaltenen Schichten wurde durch Untersuchungen mittels eines Mikroskops bestimmt und die ungeeigneten Proben verworfen. Die Proben, die zur Bestrahlung eine genügende Homogenität aufwiesen, wurden mit einer dünnen Aluminiumfolie (> 99,6 %, 10 µm Dicke, Durchmesser 16 mm) bedeckt und an den Rändern überlappt, so dass eine stabile Bestrahlungsprobe entstand. Diese Aluminiumfolien werden als „Wrap“ bezeichnet. Die gesamte Probe aus Backing, sedimentierter Schicht und Wrap wurde dann gewogen.

3.1.1 b) Elektolytische Abscheidung dünner Schichten von Osmium auf Nickel

Das Targetmaterial Osmium wurde durch elektrolytische Abscheidung aus alkalischer Lösung [39,40] in die Form dünner Schichten gebracht, wie sie für die Kerndatenmessungen erforderlich sind. Als Backingfolie diente Nickel, da es unter den im weiteren Verlauf genannten Bedingungen chemisch stabil ist. Da das angereicherte Osmium als Metallpulver vorlag, wurde es in konzentrierter Salpetersäure aufgelöst. Das dabei entstandene OsO_4 wurde in eine alkalische Lösung konzentrierter Kalilauge destilliert. Es bildete sich der Kaliumdihydroxotetroxoosmiat(VIII)-Komplex. Die konzentrierte Salpetersäure musste dazu bis zum Siedepunkt erhitzt werden. Es musste darauf geachtet werden, dass die Konzentration der alkalischen Osmium-Lösung nicht zu hoch war, da ansonsten die Elektrolyse keine hohe Ausbeute aufwies. Dies bedeutete, dass die Farbe der Lösung die eines dunkelrotbraun nicht überschreiten durfte, während gelb zu niedriger Konzentration entsprach. Die optimale

Konzentration war somit das Äquivalent von 2 mg Osmium pro mL. Der Aufbau der Elektrolyseapparatur erfolgte nach einem im Institut entwickelten Prinzip [41], das in Abbildung 9 dargestellt ist.

Die als Backing genutzten Nickelfolien (Durchmesser 13 mm) dienten bei der Elektrolyse als Kathodenfolie. Sie lagen auf einem Kupferkontakt auf. Vor der Elektrolyse wurden diese Folien mit Aceton gereinigt. Der Kupferkontakt wurde vor jeder Elektrolyse mit konzentrierter Salzsäure gereinigt und in einem nächsten Schritt mit Aceton entfettet. Anderenfalls machten sich Verunreinigungen bei der Qualität der Abscheidung negativ bemerkbar. Vor der Elektrolyse wurden die Folien gewogen. Die Elektrolyse erfolgte in einem Glaszylinder mit einem Innendurchmesser von 11 mm und einem Außendurchmesser von 16 mm, als Anode diente ein Platinblech, das an einem Rührmotor angebracht war. Durch die bewegliche Anordnung des Platinblechs konnten Gasblasen ständig von der Kathodenfolie ferngehalten werden, was eine hohe Homogenität der Elektrolytlösung bewirkte und die Qualität der Elektrolyse steigerte. Für die Dichtigkeit der Elektrolyse-apparatur wurde ein Silikonring mit einem Innendurchmesser von 11 mm zwischen Glaszylinder und Kathodenfolie eingefügt. Ein Schleifkontakt schließt den Stromkreis.

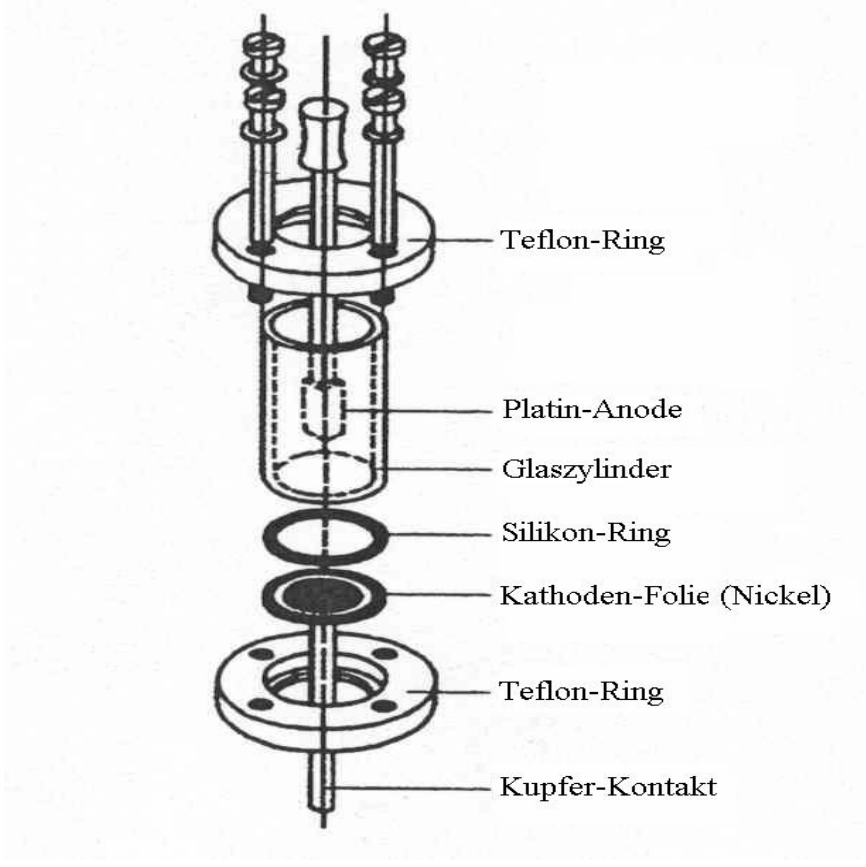

Abbildung 9: Aufbau der Elektrolysezelle nach [41]

Die Elektrolyseapparatur schließen zwei Teflon-Ringe ab, die, von oben und unten mit vier Schrauben befestigt, den Glaszylinder und die Kathode einspannen. Die Aussparungen der Ringe dienen zur Durchführung der Anode in den Glaszylinder sowie zum Anschluss der Kathode. Zur elektrolytischen Abscheidung wurden ca. 1 - 2 mL der vorbereiteten Elektrolytlösung in diese Apparatur eingefüllt, was etwa 2 bis 4 mg des Targetmaterials entspricht. Die Elektrolyse wurde bei einer Spannung von 6 - 10 V und einem Strom von ca. 0,9 A durchgeführt. Eine Gasentwicklung, die der Bildung von Sauerstoff zuzuschreiben ist, war zu erkennen. Diese Einstellungen wurden daraufhin beibehalten bis sich die Lösung komplett entfärbt hatte. Dies dauerte unter optimalen Bedingungen 1 bis 2 h und war bei überhöhter Konzentration sehr viel schneller. Die überstehende Lösung wurde mit einer Pipette abgesaugt und in einem Vorratsgefäß gesammelt. Die Elektrolysezelle wurde daraufhin zweimal mit destilliertem Wasser gewaschen und die Waschlösungen ebenfalls aufgehoben. Die aufgefangenen Lösungen dienten zur Rückgewinnung des Targetmaterials. Nach der Reinigung wurde die mit der Osmiumschicht belegte Nickelfolie entnommen und nochmals gründlich mit Wasser und Aceton gewaschen.
Die abgeschiedenen Osmiumschichten hatten eine dunkelgraue Farbe und einen Durchmesser von ca. 12 mm. Zur Kontrolle der abgeschiedenen Schichten auf Inhomogenitäten wurden diese unter einem Mikroskop untersucht. Dabei konnte die Abwesenheit von Oxiden durch das Fehlen der charakteristischen Farben der Oxide festgestellt werden. Nach dieser Kontrolle wurden die Proben mit Aluminiumfolien umhüllt, die als Wraps dienten, wie es schon im vorigen Abschnitt beschrieben wurde. Die Massen des abgeschiedenen Osmiums bewegten sich zwischen 1 und 4 mg. Eine weitere Kontrolle der Qualität des abgeschiedenen Osmiums erfolgte durch Protonenaktivierungsanalyse. Radionuklide von Gold, was auf hohe Mengen Verunreinigungen durch Platin schließen lässt, konnten nicht festgestellt werden. Verunreinigungen dieses Elements sind daher in nicht messbaren Größen in den Bestrahlungsproben vorhanden.

3.1.2 Bestrahlungsproben und -einrichtungen

Für die Kerndatenmessungen wurden nominelle Strahlströme von 100 – 200 nA verwendet. In Abhängigkeit vom untersuchten Nuklid wurden Bestrahlungszeiten von 5 bis 30 min für die kurzlebigen Neodymisotope oder 1 – 3 h für die Bildung von ^{140}Nd gewählt. Zur Produktion der Radionuklide des Platins wurde bis zu 5 h bestrahlt und die Bestrahlung des

angereicherten ^{192}Os mit Protonen zur Bildung von ^{192}Ir schließlich wurde bis zu 10 h durchgeführt. Bei Bestrahlungen mit Strahlströmen in dieser Höhe ist die externe Messung des Strahlstromes nicht sehr genau, da sie nur ungenügend gegen äußere Einflüsse (Elektronen aus anderen Quellen) isoliert ist. Daher wurde die externe Strahlstrom-bestimmung mit Monitorfolien, die im Folienstapel platziert wurden, überprüft. Für die Bestimmung von Protonen- und Alphateilchenflüssen dienten Folien aus Kupfer und Titan; bei Bestrahlung mit ^{3}He-Teilchen dienten Titan- und Aluminiumfolien zur Bestimmung des Flusses.

Am Mehrteilchen-Zyklotron CV 28 stehen für Protonenbestrahlungen Energien bis zu 20 MeV zur Verfügung. ^{3}He-Teilchen können an diesem Zyklotron bis zu 36 MeV beschleunigt werden. Des Weiteren stehen Alpha-Teilchen bis 28 MeV zur Verfügung. Für alle Teilchenarten erfolgte die Bestrahlung an der gleichen Bestrahlungseinrichtung, die schematisch in Abbildung 10 dargestellt ist [cf. 42].

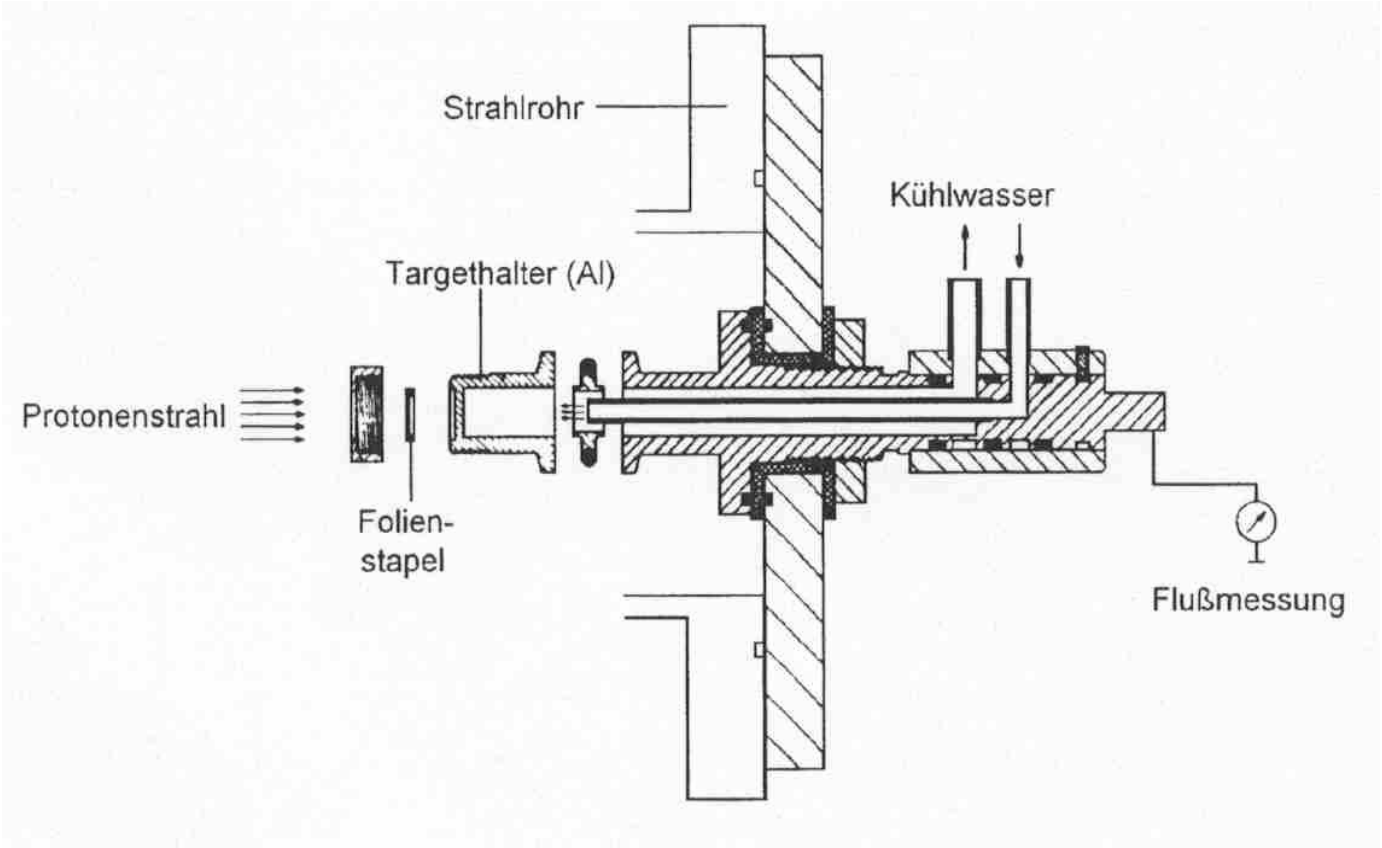

Abbildung 10: Bestrahlungseinrichtung am CV 28 [cf. 42]

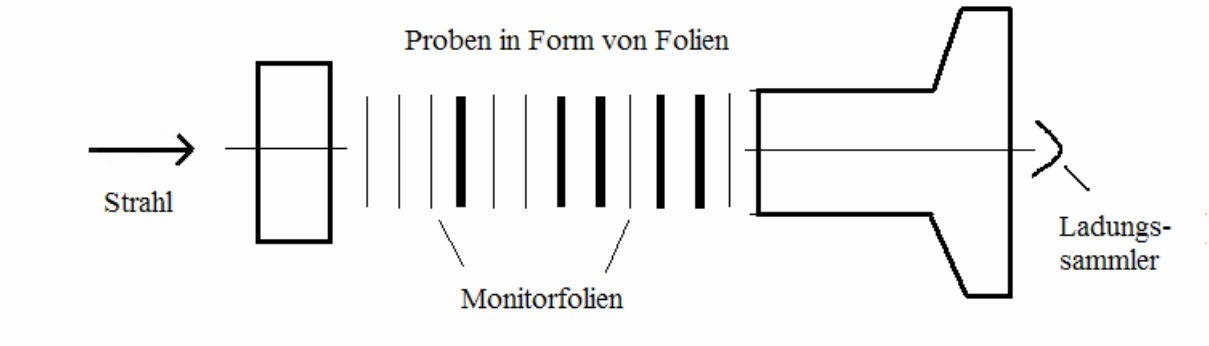

Abbildung 11: Targethalter zur Bestrahlung dünner Folien am CV 28 [cf. 42]

In den Targethalter aus Aluminium wurden Folien von 13 mm Durchmesser eingefügt und nach Verschrauben des Targethalters mit einer Verschlusskappe konnte der Targethalter an der Bestrahlungseinrichtung angebracht werden, wo das Target dann von hinten mit Wasser gekühlt wurde, was als 2π-Kühlung bezeichnet wird. Ein Schema dieses Targethalters ist in Abbildung 11 zu sehen.

Sollte mit höheren Protonenenergien als 20 MeV Experimente durchgeführt werden, stand das Injektorzyklotron des Cooler Synchrotrons COSY der Forschungszentrum Jülich GmbH zur Verfügung [43]. Dieses Zyklotron hat eine auf 45 MeV eingestellte Einschussenergie. Auch hier konnte die Folienstapeltechnik angewendet werden, der Durchmesser der Folien betrug jedoch 16 mm. Die Abmessungen der Sedimentationszelle ließen jedoch nur einen Durchmesser von 13 mm für die Backings zu. Daher mussten diese Proben auf dünne Aluminiumfolie mit einem Durchmesser von 16 mm geklebt werden. Zu diesem Zweck diente eine Lösung des Kunststoffs Levapren in Toluol.
Der Folienstapel wurde in dem in Abbildung 12 dargestellten Targethalter eingebracht.

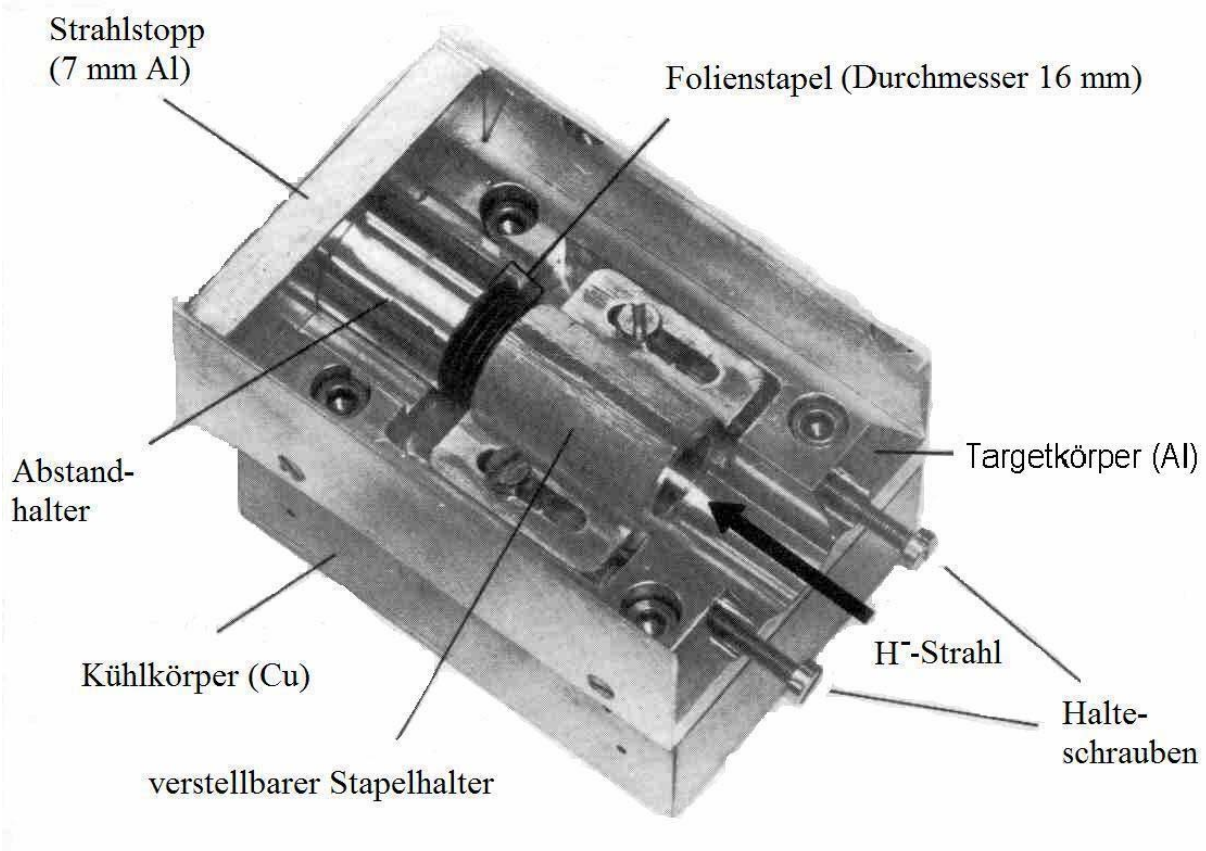

Abbildung 12: Targethalter für Bestrahlungen am Injektor des COSY [43]

Bei diesem dient ein variabler Stackhalter zur Fixierung der Folien gegen ein Aluminiumrohr als Abstandhalter. Aluminium der Stärke 7 mm dient als „Beam-Stop“. Die Folien werden in eine halbe Röhre eingelegt, die einen Durchmesser von 16 mm aufweist. Die Bestrahlungen erfolgen innerhalb des Zyklotrons, der Targethalter wird als ganzes durch eine Schleuse in das Zyklotron eingeführt, wobei das Vakuum des Zyklotrons unbeeinträchtigt bleibt. Eine schematische Darstellung der Bestrahlungseinrichtung am Injektor des COSY ist in Abbildung 13 wiedergegeben.

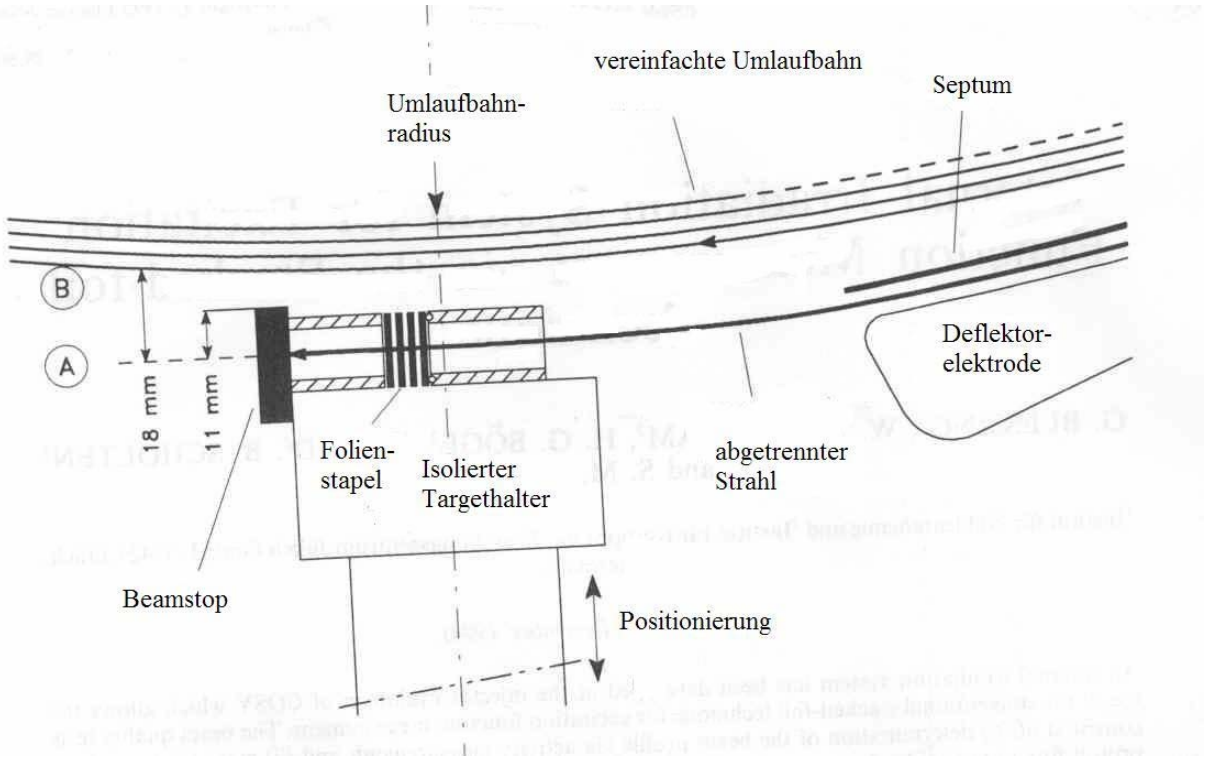

Abbildung 13: Bestrahlungseinrichtung am Injektor des COSY [43]

3.1.3 Chemische Aufarbeitung des bestrahlten Targetmaterials

Die Radioaktivitätsbestimmung der gebildeten Nuklide erfolgte bei Kerndatenmessungen meistens zerstörungsfrei. Die Radionuklide ^{140}Nd und ^{192}Ir sind so langlebig, dass sie nach angemessener Abklingzeit, d. h. nach dem Zerfall der meisten Störnuklide, gut gemessen werden konnten. Hierin liegt auch der Grund, weshalb Aluminiumfolie als Backing ungeeignet war. An Aluminium entstand nämlich bei Protonenenergien über 30 MeV eine nicht unerhebliche Menge ^{22}Na, das nicht nur langlebig ist, sondern auch Positronenstrahlung hoher Intensität aufweist. Diese erwies sich bei der Aufnahme von Zerfallskurven zur Messung des ^{140}Nd als störend. Das als langlebiges Störnuklid an Kupfer gebildete ^{65}Zn störte auf Grund seine niedrigen Positronenemissionswahrscheinlichkeit (ca. 1 %) nicht bei der Aufnahme solcher Zerfallskurven. Bei der Untersuchung zur Bildung von ^{192}Ir durch protoneninduzierte Reaktion an Osmium, störte das am Backing gebildete ^{57}Co auf Grund seiner niedrigen γ-Energien (121 und 136 keV) nicht bei der Messung der Aktivität. Bei der Messung der kurzlebigen Nd-Isotope wurden die entsprechenden Oxide, besonders zur Messung von ^{141g}Nd, mechanisch vom Backing getrennt.

Zur Messung der bei der Bestrahlung von Osmium mit Alpha- und ^{3}He-Teilchen gebildeten Radionuklide des Platins, insbesondere zur Messung der Röntgenlinien, wurde eine chemische Abtrennung des Platins von allen nichtisotopen Verunreinigungen durchgeführt. Die verwendete Methode wurde von Bonardi et al. [26] beschrieben. Dieses Verfahren wurde ausgewählt, da es einfach und schnell eine hohe Ausbeute und radionuklidische Reinheit des abgetrennten Platins versprach, weil die Selektivität für diese Extraktion sehr hoch ist.

Der erste Schritt bestand darin, möglichst wenig Störnuklide in die abzutrennende Lösung zu bringen. Dazu wurde vor dem Prozess des Auflösens das Wrap aus Aluminium entfernt. Danach wurden die bestrahlten Proben, d. h. Nickel und das darauf elektrolysierte Osmium in konzentrierter Salpetersäure gelöst. Der Löseprozess fand bei erhöhter Temperatur von etwa 160°C statt, in dessen Verlauf sich aus dem Targetmaterial wieder OsO_4 bildete, das zur Wiederbenutzung des angereicherten Targetmaterials in eine stark alkalische Lösung destilliert wurde. Das Radioplatin blieb in der salpetersauren Lösung zurück. Nach Abkühlen dieser Lösung wurde diese zur Trockne eingedampft und der Rückstand in 3 M Salzsäure aufgenommen. Hernach wurden einige Tropfen einer 10-prozentigen Zinn(II)chlorid-Lösung zugegeben, die aus metallischem Zinn und Salzsäure hergestellt wurde. Dies geschah zur Reduktion des nach der Lösung in Salpetersäure vorliegenden vierwertigen Platins in die zweiwertige Oxidationsstufe. Die Abtrennung erfolgte durch eine Extraktion des Radioplatins mit Diethyl- oder Diisopropylether. Nach drei bis vierfachem Ausschütteln konnte eine fast quantitative Abtrennung der Platinisotope von allen anderen Radionukliden erzielt werden. Es musste jedoch darauf geachtet werden, dass die Etherphase trocken war. In einigen Fällen musste dazu ein Trockenmittel (beispielsweise Na_2SO_4) zugefügt und der überstehende Ether abfiltriert werden. Zur Messung der Aktivität wurde die Etherphase eingeengt und auf ein dünnes Blatt Filterpapier verbracht. Auf diese Weise konnten auch Röntgenlinien gemessen werden. Die Bestimmung der chemischen Ausbeute der Trennung erfolgte auf radiometrischem Weg, d. h. es wurden die γ-Linien des Nuklids ^{191}Pt vor und nach der Trennung gemessen. Diese Methode hat den Vorteil, dass sie ohne Zusatz von Träger auskommt und sehr genau ist. Zudem ist die Extraktion schneller, wenn nur Radioplatin vorhanden ist. Schließlich ist auch die Übertragbarkeit der chemischen Abtrennung auf diese Weise in den Produktionsmaßstab besser gegeben als mit Träger und etwaige Probleme fallen schon an dieser Stelle auf. Nach Anwendung dieser Methode war zur Messung der Kerndaten keine weitere Trennung notwendig. Die Ausbeute dieser Trennung betrug 60 – 90 % und es

konnten in den finalen Proben keine oder nur noch geringe Mengen (< 0,01 % des Anfangswertes) nicht-isotoper Verunreinigung (^{56,58}Co oder ^{65}Zn) nachgewiesen werden.

Das bei der Elektrolyse abdestillierte OsO_4 konnte in der alkalischen Form, die der unter 3.1.1 b) beschriebenen Lösung entspricht, wieder zur elektrolytischen Probenpräparation dienen. In dieser alkalischen Lösung wurden nur geringe Spuren von Radioaktivität (insgesamt kleiner als 0,01 %) (^{56,58}Co oder ^{65}Zn), aber insbesondere kaum Radioplatin, nachgewiesen. An dieser Stelle tritt somit kein nennenswerter Verlust von Radioplatin auf.

3.1.4 Bestimmung der Radioaktivität

3.1.4 a) γ-Spektrometrie

Zur γ-spektrometrischen Bestimmung der Radioaktivität dienten hochreine Germanium (HPGe)-Detektoren, die von der Firma EG&G Ortec geliefert und von IBM-kompatiblen Computern mit 4 K MCA-Steckkarten gesteuert wurden. Die Auswertung der γ-Spektren erfolgte mittels des Programms Gamma Vision, Version 5.1, dessen Hersteller ebenfalls EG&G Ortec ist. Der Abstand zum Detektor hing von der Aktivität der Proben ab. Die längerlebigen Produkte wurden bei einem Abstand von 10 cm gemessen, während die kurzlebigen Produkte bei höheren Abständen bis zu 50 cm gemessen wurden. Die Totzeit wurde kleiner als 10 % gehalten um das Auftreten zufälliger Koinzidenzen zu minimieren. In jedem Fall wurden mehr als eine Messung durchgeführt, so dass auch eine Kontrolle der Halbwertszeit möglich war.

Auch zur Messung der Aktivität von ^{140}Nd, die über die Vernichtungsstrahlung des Tochternuklids ^{140}Pr durchgeführt wurde, dienten HPGe-Detektoren. Um die vollständige Vernichtung der Positronen zu gewährleisten, wurde jede Probe mit Kupferblechen von etwa 2 mm Dicke umgeben. Da diese Form der Strahlung nicht selektiv für ein Nuklid ist, mussten Zerfallskurven der ^{140}Nd enthaltenen Proben aufgenommen werden. Dazu besitzt das Programm Gamma Vision die Möglichkeit, Messabläufe zu programmieren und computer-gesteuert ablaufen zu lassen. Ein Beispiel für eine solche Zerfallskurve ist in Abbildung 14 dargestellt. Zudem muss darauf geachtet werden, dass das direkt gebildete ^{140}Pr zerfallen ist und sich bei der Messung ein radioaktives Gleichgewicht eingestellt hat. Dies ist bei dem

Verhältnis der Halbwertszeiten nach einigen Stunden gegeben. An die Kurve wurde nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate eine exponentielle Kurve angepasst, deren Exponent einer Halbwertszeit von 3,37 d entsprach. Aus Abbildung 14 ist ersichtlich, dass die Kurve sehr gut mit den Messergebnissen übereinstimmt. Somit kann davon ausgegangen werden, dass es sich bei dem Positronenstrahler um ^{140}Nd handelt.

Eine Schwierigkeit bei der Messung der Vernichtungsstrahlung im Vergleich zu anderen γ-Linien ist die Breite des Peaks. Automatische Peakflächenbestimmungen, die in das Programm Gamma Vision integriert sind, können die Peakfläche der Vernichtungsstrahlung nur ungenügend bestimmen. Die Integration dieses Peaks zu dessen Peakflächenbestimmung erfolgte daher mit manuell gesetzten Integrationsgrenzen. Abbildung 15 zeigt eine solche Peakintegration. Aus der Abbildung ist ersichtlich, dass eine Unsicherheit bei den Grenzen des Peaks bleibt. Durch die Wahl der Grenzen kann jedoch die Unsicherheit in die gleiche Größenordnung wie die anderer Peaks gebracht werden.

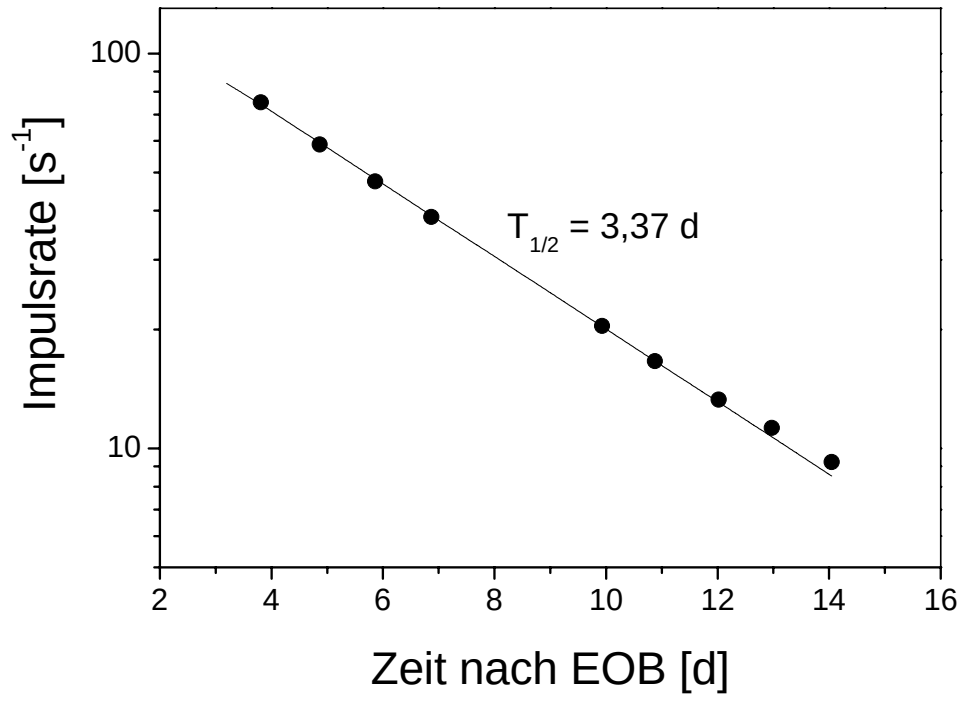

Abbildung 14: Beispiel für eine Zerfallskurve des ^{140}Nd

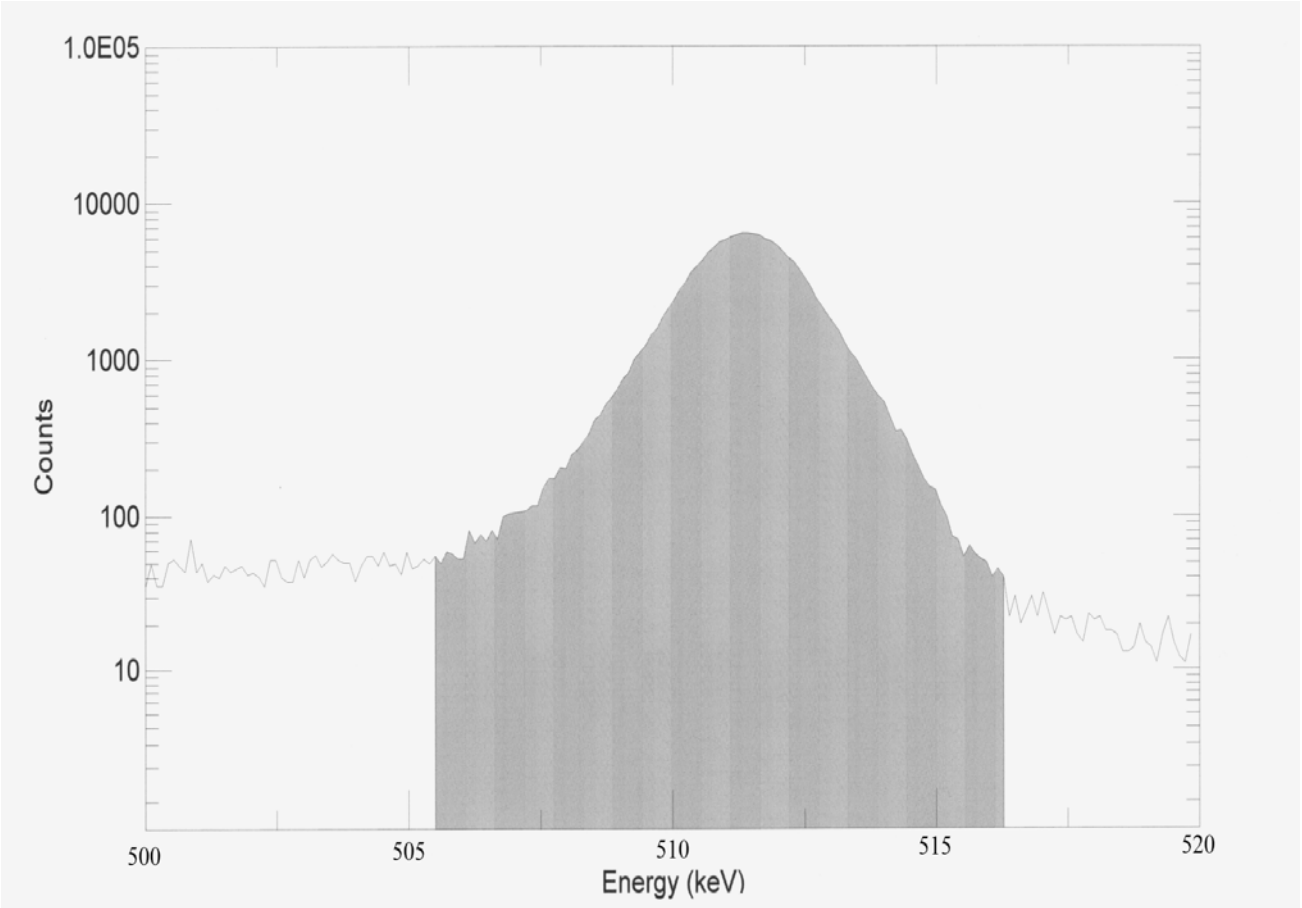

Abbildung 15: Darstellung einer Peakintegration der Vernichtungsstrahlung

3.1.4 b) Röntgenspektrometrie

Die Platinnuklide wurden z. T. über deren Röntgenlinien gemessen, und zwar unter Anwendung eines speziellen HPGe-Detektors, der mit einem dünnen Berylliumfenster ausgestattet ist. Röntgenlinien haben den Nachteil, dass sie spezifisch für Elemente und nicht für Nuklide sind. Zudem liegen viele Linien eines einzigen Nuklids nahe beieinander. Daher müssen die Grenzen für die Auswertung von Röntgenlinien auch durch Markierung manuell bestimmt werden. Ein Beispiel für solch eine Markierung ist in Abbildung 16 zu sehen.

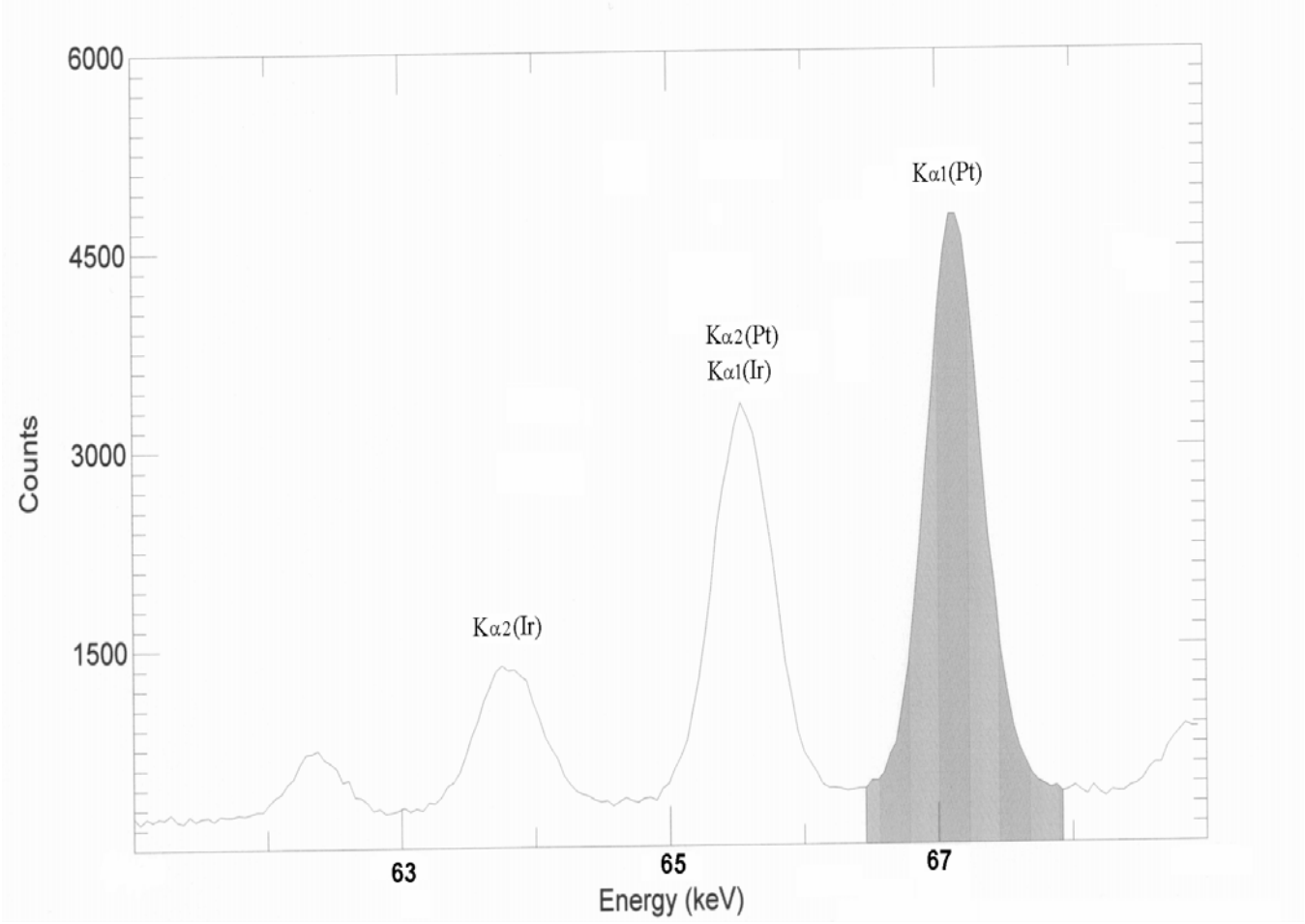

Abbildung 16: Darstellung einer Peakintegration für Röntgenlinien

Die Kalibrierung eines jeden Detektors und die Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit dieses Detektors wurden mit Hilfe von Standardpräparaten bekannter Aktivität durchgeführt, die von der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig oder der Firma Amersham geliefert wurden (siehe Abschnitt 7.2). Aus der bekannten Absolutaktivität (Siehe Gleichung 15) wurde die Ansprechwahrscheinlichkeit folgendermaßen bestimmt:

$$\varepsilon = \frac{P_A}{A_{abs} \cdot I_\gamma \cdot T_K} \tag{19}$$

An Abbildung 17 erkennt man, dass HPGe-Detektoren ein Maximum der Ansprechwahrscheinlichkeit um 150 keV aufweisen. Der weitere Kurvenverlauf kann in dieser Auftragung als Gerade angenähert werden. Dies dient zur Kontrolle der Qualität der Ansprechwahrscheinlichkeit eines Detektors. Für den für niedrige γ-Energien geeigneten HPGe-Detektor wurden Standardpräparate verwendet, die Niederenergie γ-Linien, wie ^{241}Am oder ^{133}Ba, aufweisen. Für die Standardisierung der Messung der Vernichtungsstrahlung wurde ein ^{22}Na-Standardpräparat in gleicher Geometrie wie die ^{140}Nd-Proben, d. h. ebenso mit Kupferplatten umgeben, gemessen. Die Absolutaktivität wurde mit Hilfe der bestimmten Ansprechwahrscheinlichkeiten unter Anwendung von Gleichung (15) für den jeweiligen Detektor berechnet, und mit Gleichung (16) erfolgte die Korrektur auf EOB.

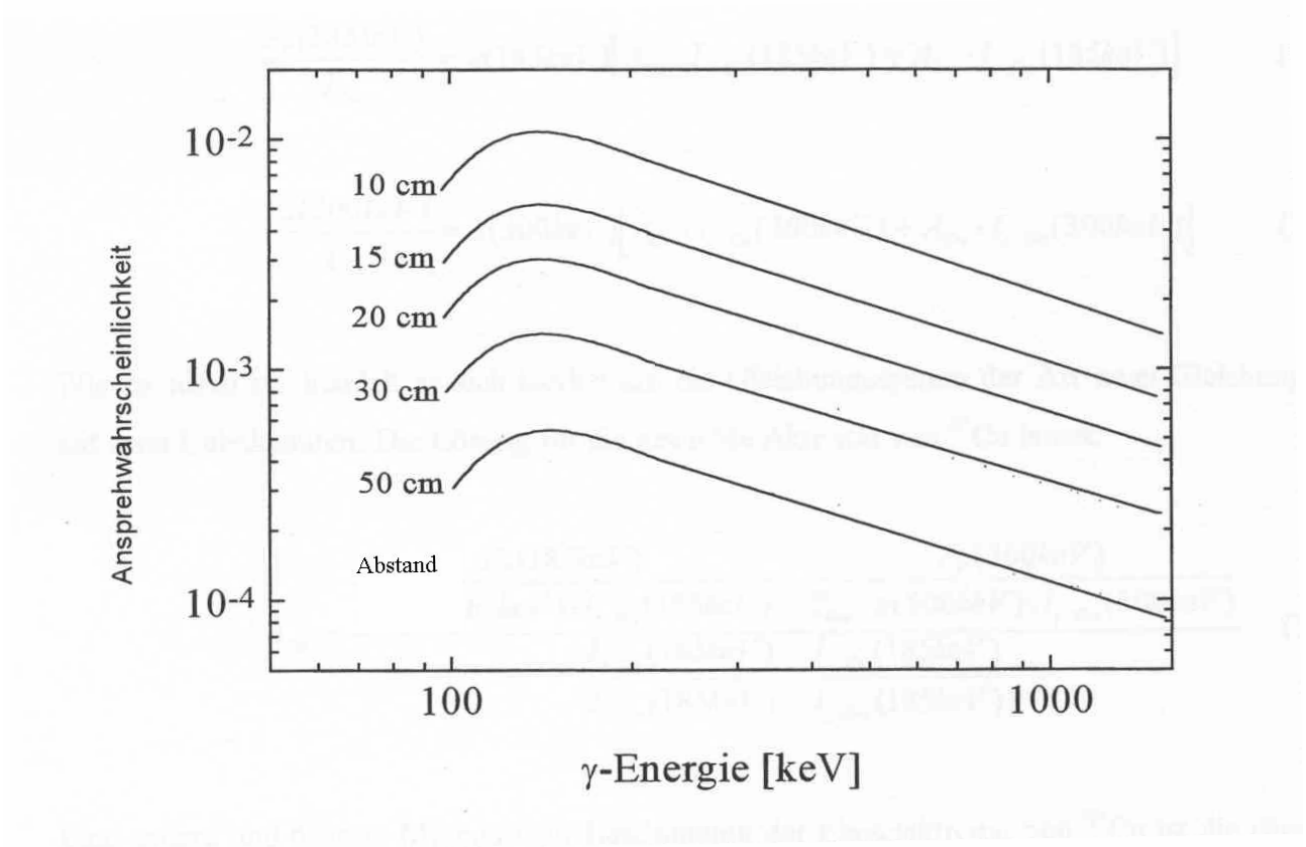

Abbildung 17: Beispiel für den Verlauf der Ansprechwahrscheinlichkeit eines HPGe-Detektors

Eine Korrektur zur Berücksichtigung des Zerfalls des jeweiligen Nuklids während der Messung konnte vernachlässigt werden, da die Messzeit im Vergleich zur Halbwertszeit stets kurz gehalten wurde.

3.1.5 Berechnung der Teilchenflüsse und Reaktionswirkungsquerschnitte; Abschätzung der Unsicherheiten

Die Berechnung der Teilchenflüsse erfolgt mit den in Abschnitt 1.6.5 genannten Monitorreaktionen, die in den jeweiligen Bereichen bekannte Wirkungsquerschnitte aufweisen. Die Berechnung der Wirkungsquerschnitte erfolgte dann mit Gleichung (11) aus den Absolutaktivitäten der jeweiligen Nuklide unter zu Hilfenahme der aus den Monitorreaktionen berechneten Teilchenflüssen.

Alle Messungenauigkeiten, die bei den verschiedenen Arbeitsvorgängen auftraten, sind bei der Ermittlung der Gesamtunsicherheit zu berücksichtigen. Darunter fallen die Ungenauigkeiten bei der Massenbestimmung der Monitor- und Backingfolien, sowie bei der Differenzwägung zu Bestimmung der Probenmassen, Inhomogenitäten bei der Probenpräparation sowohl bei der Sedimentation als auch bei der elektrolytischen Abscheidung, die Unsicherheiten bei den Ansprechwahrscheinlichkeiten der Detektoren und die Unsicherheiten bei der Peakflächenbestimmung. Diese hängt von der Art des Nuklids ab. Bei der Messung von ^{141}Nd aus Ceroxid ist die Unsicherheit höher, da die Impulsraten verglichen mit denen der anderen Nuklide niedriger sind. Auch bei der Bestimmung der Aktivitäten der Röntgenstrahler ist auf Grund der Überlagerung verschiedener Linien eine höhere Unsicherheit zu berücksichtigen. Da diese Unsicherheiten bei der Flussbestimmung ebenso wie bei der Messung der Wirkungsquerschnitte auftreten, sind die Wirkungsquerschnitte doppelt fehlerbehaftet. Des Weiteren sind die Energiepunkte bei der Bestrahlung ebenfalls fehlerbehaftet, da die Anfangsenergie und die Energiedegradierung unsicher sind. Auch hier unterscheiden sich die Unsicherheiten der verschiedenen Messungen. So ist die Energieunsicherheit bei der Messung von Protonen am Anfang des Folienstapels nur etwa 0,2 MeV groß. Bei ^{3}He-Teilchen beträgt sie jedoch ca. 0,5 MeV, da die Ceroxid-Proben etwa die gleiche Dicke aufweisen, wie die des Praseodymoxids und die ^{3}He-Teilchen ihre Energie in Materie schneller verlieren.

Auf Ursachen und Auswirkungen der Unsicherheiten wird in den nächsten Abschnitten genauer eingegangen.

3.1.5.1 Unsicherheit der Massenbestimmung

Die Massen konnten mit der Analysenwaage Mettler AT 261 auf 0,1 mg genau bestimmt werden. Da die Folien abhängig vom verwendeten Material eine unterschiedliche Masse aufwiesen, besteht eine Abweichung der relativen Unsicherheit der Folien. Ein Wert von 2 % wurde jedoch in keinem Fall überschritten. Dieser Wert setzt sich aus dem Wägefehler und der Abweichung der Folienmassen der einzelnen Messungen von der mittleren Folienmasse nach der Summe der Fehlerquadrate zusammen. Bei der Bestimmung der Masse der Bestrahlungsproben ergab sich eine Vergrößerung der Unsicherheit, da die Unsicherheiten dreier Massenbestimmungen (Backingfolie, Aluminium-Wrap und jeweiliges Targetmaterial + Backingfolie + Aluminium-Wrap) einen Einfluss auf diese Unsicherheit haben. Da jedoch der Fehler in der Bestimmung der Masse der Aluminium-Wraps den relativ größten Anteil an der Gesamtunsicherheit beiträgt, ist diese Vergrößerung der Unsicherheit so gering, dass auch für die Massen der Bestrahlungsproben eine Unsicherheit von 2 % angesetzt werden konnte.

3.1.5.2 Unsicherheit durch Inhomogenitäten der Bestrahlungsproben

Trotz Kontrolle der Schichten mit einem Mikroskop können kleinere Inhomogenitäten nicht erkannt werden. Diese Inhomogenitäten führen zu einer Unsicherheit in der Zahl der bestrahlten Atome (N in der Aktivierungsgleichung) und zu Ungenauigkeiten der Energiedegradierung innerhalb der Probe, da das Flächengewicht bei Inhomogenitäten nicht fehlerfrei berechnet werden kann. Eine Abschätzung der Unsicherheit beträgt hier etwa 5 %.

3.1.5.3 Unsicherheit bei der Ermittlung der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors

Die Ansprechwahrscheinlichkeit eines Detektors ist ebenfalls fehlerbehaftet. Die Unsicherheit resultiert aus der Ungenauigkeit bei der Peakflächenbestimmung, der Standardpräparate und der Kurvenanpassung sowie der Unsicherheit der Energiekalibrierung. Die Unsicherheit bei der Peakflächenbestimmung wurde dadurch niedrig gehalten, dass niedrige Totzeiten und hohe Peakflächen (mindestens 10000 Impulse) gewählt wurden, so dass sich durch die

Peakflächenbestimmung ein statistischer Fehler von 1 % ergibt. Die Ungenauigkeit der Anfangsaktivität der Standardpräparate betrug 3 - 6 %, die Kurvenanpassung leistete einen Beitrag von ca. 2 - 3 %. Für die Unsicherheit in der Energiekalibrierung konnte ein Wert nur abgeschätzt werden. Daraus ergab sich nach der Summe der Fehlerquadrate (mit einer Annahme eines Fehlers von 1 % bei der Energiekalibrierung) eine Gesamtunsicherheit von 4 - 7 % bei der Ansprechwahrscheinlichkeit.

3.1.5.4 Unsicherheit bei der Bestimmung der Peakfläche

Die Unsicherheit bei der Bestimmung der Peakflächen eines Monitorproduktes war nicht sehr groß (ca. 1 %), da die Monitorfolie bei fast allen Messungen eine ausreichende Impulszahl zeigte, so dass in jedem Fall wenigstens 10000 Impulse gesammelt werden konnten. Nur bei der Bestimmung der Aktivität von ^{63}Zn konnte dies auf Grund der kurzen Halbwertszeit nicht bei allen Messungen gewährleistet werden. Bei der Messung der jeweiligen Bestrahlungsproben war eine derartige Impulszahl nicht immer zu erreichen. Während die längerlebigen Nuklide lang genug gemessen werden konnten, war dies für die kurzlebigen Nuklide nicht immer möglich. Besonders für ^{139g}Nd und ^{141}Nd konnten oft keine 10000 Impulse erreicht werden. Abhängig von den jeweiligen Nukliden ergab sich eine Unsicherheit von ca. 2 - 10 % bei der Peakflächenbestimmung.
Zusammen mit dem statistischen Fehler ergibt sich eine Unsicherheit von 2 - 5 % für die Peakflächen der Monitorfolien und von ca. 2 – 10 % bei der Ermittlung der Peakflächen abhängig vom untersuchten Porduktnuklid.

3.1.5.5 Unsicherheit der Energiebestimmung aus der Stackrechnung

Bei der Berechnung der Energiedegradierung des Strahls in Materie entsteht eine Unsicherheit, die aus der Unsicherheit bei der Anfangsenergie (0,2 MeV aus der Vorgabe durch die Energiemessung, 0,5 MeV für ^{3}He-Teilchen bei der Bestrahlung von Ceroxid) und der Form der Energiedegradierung innerhalb von Materie verursacht wird. Diese Form ist die eines kurvenförmigen Peaks, dessen Maximum eine Unsicherheit aufweist, wodurch auch die Energiedegradierung fehlerbehaftet ist. Durch diese Unsicherheit kommt es zu einer Ungenauigkeit in der berechneten Energie, die mit der Zahl der Folien zunimmt. Für

Folienstacks mit hoher Folienzahl (z. B. bei den COSY-Bestrahlungen, aber auch bei langen ^{3}He-Stacks) wird eine Unsicherheit von bis zu 1 MeV berechnet.

3.1.5.6 Unsicherheit in der Teilchenflussbestimmung

Die Unsicherheit bei der Ermittlung der Teilchenflüsse ergibt sich aus der Unsicherheit in der Massenbestimmung der Monitorfolien (1 %), der Unsicherheit der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors (4 - 7 %) und der Ungenauigkeit der Peakflächenbestimmung (2 - 5 %). Des Weiteren kommt zu dieser Unsicherheit noch die Unsicherheit des Wirkungsquerschnitts. Diese ist besonders dann sehr groß, wenn die Anregungsfunktion in kleinen Energiebereichen große Änderung aufweist. Die Unsicherheit der Literaturwerte wird mit etwa 8 - 10 % angenommen. Die Unsicherheit bei der Teilchenflussbestimmung ergibt sich somit aus der Summe der Fehlerquadrate zu 9 - 12 %.

3.1.5.7 Unsicherheit bei der Bestimmung der chemischen Ausbeute

Die Unsicherheit bei der radiometrischen Bestimmung der chemischen Ausbeute ergab sich aus der Gesamtunsicherheit der Aktivitätsbestimmung (siehe 3.5.2 bis 3.5.4) zu 3 - 5 % für die Messung von ^{191}Pt, was zur radiometrischen Ausbeutebestimmung verwendet wurde. Da diese Unsicherheit zweimal berücksichtigt werden muss, ergab sich eine Gesamtunsicherheit von etwa 3 - 7 %.

3.5.8 Gesamtunsicherheit der bestimmten Wirkungsquerschnitte

Die Gesamtunsicherheit des Wirkungsquerschnitts ergibt sich aus allen genannten Unsicherheiten nach der Methode der Summe der Fehlerquadrate zu ca. 17 %. Bei der Bestimmung von $^{139m+g}$Nd fließt diese Unsicherheit zweimal ein, so dass die Unsicherheit dort etwa 30 % beträgt. In Tabelle 6 ist eine Zusammenfassung der genannten Unsicherheiten aufgelistet.

Tabelle 6: Unsicherheiten bei der Bestimmung der Wirkungsquerschnitte

Quelle der Unsicherheit	Größe der Unsicherheit
Unsicherheit bei der Zahl der bestrahlten Atome	2 %
Unsicherheit bei der Targethomogenität	5 %
Unsicherheit in den Ansprechwahrscheinlichkeit der Detektoren	4 - 7 %
Unsicherheit in der Peakfläche	2 - 10 %
Unsicherheiten bei den Wirkungsquerschnitten der Monitorreaktionen	9 - 12 %
Unsicherheiten der chemischen Abtrennung	5 %
Gesamtunsicherheit	**10 - 30 %**
Unsicherheit bei der Bestimmung der Energie der Proben	0,2 - 0,8 MeV

3.2 Ausbeuterechnung aus der Anregungsfunktion

Zur Berechnung der differentiellen Ausbeute wurde Gleichung (13) genutzt. Dazu wurde mit Hilfe des Programms „STACK“ die Masse des jeweiligen Targetmaterials (Cer, Praseodym bzw. Osmium in den verschiedenen Anreicherungsgraden) berechnet, die in einem bestimmten Bereich zu einer Energiedegradierung von 1 MeV führt. Diese Masse und der mittlere Wirkungsquerschnitt der jeweiligen Reaktion im betreffenden Energiebereich, der durch Anpassung von Kurven an die ermittelten Wirkungsquerschnitte erhalten wurde, ergaben eingesetzt in Gleichung (13) die differentiellen Ausbeuten. Durch Aufsummieren der differentiellen Ausbeuten von der jeweiligen Reaktionsschwelle bis zu dem betreffenden Energiemaximum konnte die integrale Ausbeute der jeweiligen Reaktion bestimmt werden.

Diese Ausbeuterechnung ist für alle in dieser Arbeit bestimmten Reaktionen, außer für die Reaktionen, bei denen ^{139}Ce gebildet wird, durchgeführt worden.

3.3 Methodische Entwicklung zur Produktion von Platinnukliden

3.3.1 Herstellung eines Hochstromtargets

Die Präparation des angereicherten ^{192}Os-Targets zur Bestrahlung mit hohen Strahlströmen wurde elektrolytisch in gleicher Weise durchgeführt, wie in Abschnitt 3.1.1 b) für die Kerndatenmessungen beschrieben. Es wurde in diesem Fall jedoch eine 1 mm starke Scheibe aus Edelstahl oder Ni als Backing verwendet. Um dickere ^{192}Os-Schichten zu erhalten, wurde der Prozess mehrere Male wiederholt. Zur Elektrolyse wurde eine auf die gleiche Weise wie in Abschnitt 3.1.1 b) beschriebene Lösung verwendet. Daraus ergab sich eine Abscheidung von ca. 3 bis 4 mg Osmium pro Elektrolyse. Um also eine Schichtdicke von 0,02g/cm^2, was bei einer Kreisfläche von ca. 1,5 cm^2 einer Abscheidung von ca. 30 mg entspricht, zu erhalten, mussten 8 bis 10 Zyklen dieser Elektrolyse durchgeführt werden. Bei einer Zeit von 1 bis 2 h pro Zyklus ergaben sich für diese Targets somit Gesamtelektrolysezeiten bis zu 20 h.

3.3.2 Bestrahlungen

Für die Bestrahlungen standen Targethalter zur Verfügung, die die bei hohen Strahlströmen auftretende Wärme gut abführen können. Die Energiedichte im Target lässt sich nach folgender Gleichung berechnen:

$$ED = \frac{EV \cdot I}{F} \tag{20}$$

mit ED = Energiedichte im Target
EV = Energieverlust des einfallenden Teilchenstrahls im Target
I = Intensität des einfallenden Teilchenstrahls
F = bestrahlte Fläche

Bei schräggestellten Haltern ist der Weg im Target länger, so dass die Energiedichte abnimmt. In diesem Fall muss ein Faktor in Betracht gezogen werden, der den Winkel zum Strahl berücksichtigt:

$$b = a \cdot \sin\Theta \tag{21}$$

Hierbei ist b der Weg im schräggestellten Target, a der Weg im senkrecht stehenden Target und Θ der Winkel zwischen Strahl und Target.

Einer dieser Targethalter ist in Abbildung 18 zu sehen. Der Targethalter besteht aus einem Kühlkörper aus Messing. In diesem Kühlkörper befindet sich eine Aussparung für das Target. Diese Aussparung ist kreisförmig und hat einen Durchmesser von 25 mm und eine Dicke von 1 mm. Sie wird gegenüber dem Kühlwasser mit einem O-Ring gedichtet. Das Target wird von der Rückseite durch direkten Kontakt mit fließendem Kühlwasser gekühlt. Dazu dient ein Rohr, welches das Kühlwasser direkt unter das Target spritzt (siehe Abbildung 18). Das verbrauchte Kühlwasser läuft an dem Rohr vorbei in den Kreislauf zurück. Auf der Oberseite des Targethalters befindet sich ein Bügelhalter, der das Target während der Bestrahlung fest andrückt. In diesem Bügelhalter befindet sich eine Öffnung mit der Breite von ca. 15 mm. Daher wurde die Elektrolysefläche bei den Hochstromtargets auf 14 mm beschränkt. Der Targethalter weist einen Winkel von 20° gegenüber dem Strahl auf, was zu einer Erhöhung der effektiven Schichtdicke und einer Verminderung der Wärmeentwicklung in diesem Target beiträgt.

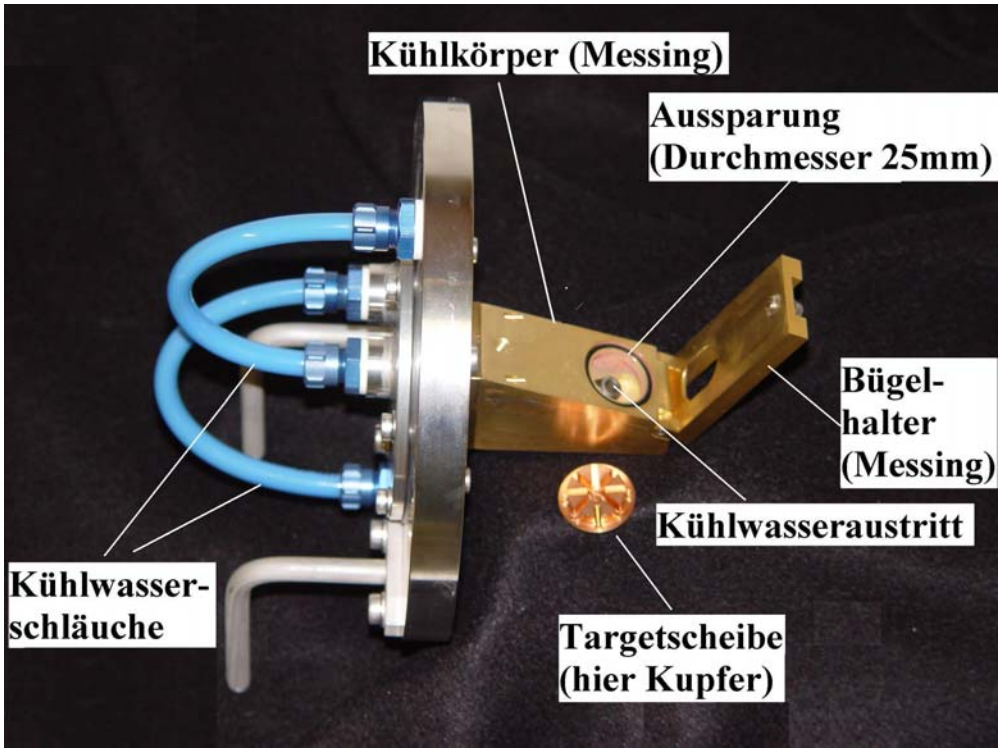

Abbildung 18: Targethalter für die Bestrahlung mit hohen Teilchenströmen

Die Edelstahl oder Ni-Platte (Durchmesser 25 mm und Stärke 1 mm), auf die das angereicherte ^{192}Os elektrolysiert wurde, wird in die oben beschriebene Aussparung gelegt. Nach Schließen des Bügelhalters kann diese Platte bei der Bestrahlung in ihrer vollen Fläche gekühlt werden und die Kühlung ist somit sehr effektiv. Maximale Strahlströme von 20 μA waren so möglich. Bei einem Winkel von $\Theta = 90°$ zum Strahl hätte sich auf diese Weise eine Energiedichte von ca. 180 W/cm^2 ergeben. Durch die Schrägstellung des Targets ergab sich eine Energiedichte von ca. 60 W/cm^2.

3.3.3 Chemische Abtrennung des Platins

Die chemische Abtrennung erfolgte ebenso wie die Rückgewinnung des Targetmaterials, wie in Abschnitt 3.1.3 beschrieben. Auch bei dieser Trennung ergaben sich hohe Ausbeuten, von ebenfalls etwa 60 – 90 % und hohe radionuklidische Reinheiten. Die chemische Reinheit dieses Platins war jedoch begrenzt, da große Mengen an Zinn sich ebenfalls in der Lösung befanden. Daher wurde zur Produktion der Platinnuklide auf eine andere Weise die chemische Abtrennung durchgeführt.

Zuerst wurde die bestrahlte Probe, d. h. Osmium und Nickel bzw. Edelstahl, in konzentrierter Salzsäure gegeben. Aufgrund der hohen Widerstandfähigkeit von Osmium gegen Säuren wurde bei diesem Prozess das umliegende Material gelöst, Osmium jedoch nicht. Blieb dabei die Osmiumschicht erhalten, so konnte sie leicht aus der Lösung entfernt werden. Anderenfalls musste das Osmium mittels eines Filters aus der Lösung gebracht werden. In allen Fällen wurde das so behandelte Osmium mehrmals mit konzentrierter Salzsäure gründlich gewaschen, so dass ein Grossteil der Störnuklide entfernt war. Nach durchgeführter Reinigung wurde das bestrahlte Osmium in konzentrierter Salpetersäure gelöst und zur Wiederverwendung abdestilliert. Im Rückstand befand sich nun relativ sauberes Radioplatin. Die restlichen Radionuklide wurden durch Kationenaustauschchromatographie an DOWEX 50 WX 8 entfernt. Die radiochemische Ausbeute war hier jedoch nicht so hoch, da einiges Platin aufgrund der geringen Masse auf dem Austauscherharz verloren ging. Radiochemische Ausbeuten von ca. 50 % konnten jedoch bei hoher radionuklidischer Reinheit (< 0,01 % nicht-isotope Verunreinigungen) erhalten werden.

3.3.4 Qualitätskontrolle des Produktes

Die radionuklidische Kontrolle des Produktes erfolgte mit Hilfe der γ-Spektrometrie. Die Proben wurden nicht nur mit einem Niederenergie-γ-Detektor gemessen, sondern auch mit einem Standard HPGe-Detektor, so dass auch höherenergetische γ-Linien gemessen und ausgewertet werden konnten. Die radionuklidische Reinheit war stets gut, d. h. es wurden keine oder nur ganz wenige Verunreinigungen gefunden.

Die radiochemische Reinheit konnte durch das säulenchromatographische Verhalten des Radioplatins festgestellt werden.

Die chemische Reinheit wurde durch ICP-MS sichergestellt. Die Analysen wurden in Zusammenarbeit mit der Zentralabteilung für chemische Analysen der Forschungszentrum Jülich GmbH durchgeführt. Mit Hilfe der letzten Methode konnte auch die spezifische Aktivität ermittelt werden, indem die Menge des stabilen Platins bestimmt wurde.

4 Kernmodellrechnungen

Kernmodellrechnungen dienen der theoretischen Ermittlung von Kernreaktionsdaten. Sie erlauben eine Validierung der experimentellen Daten. Durch den Vergleich verschiedener Kernmodellrechnungen mit experimentellen Daten kann außerdem eine Aussage darüber getroffen werden, welches Kernreaktionsmodell für die untersuchte Reaktion am besten zutrifft. In dieser Arbeit wurden die Rechnungen unter Anwendung von zwei Kernmodellen durchgeführt.

4.1 ALICE-IPPE

ALICE-IPPE basiert auf dem modifizierten Precompound-Modell. Entwickelt wurde ALICE von Blann et al. [44]. ALICE-IPPE ist eine vom „Institute for Physics and Power Engineering“ (IPPE) in Obninsk, Russland [45] durchgeführte Weiterentwicklung der Version ALICE-91. Bei ALICE-IPPE findet das generalisierte Superfluid-Modell Anwendung [46-50] und dient zur Bestimmung der Kernniveaudichten. Des Weiteren wird das geometrieabhängige Hybridmodell zur Beschreibung der Clusteremission eingesetzt [51]. ALICE-IPPE berücksichtigt „knockout“-Prozesse bei seinen Rechnungen genauso wie „pick-up“-Prozesse (für die α-Emission), Nukleonenpaarung und Schaleneffekte. Die direkte Emission von Deuteronen wird phänomenologisch angenähert, die Emissionsspektren von ^{3}H und ^{3}He werden nach dem so genannten „pick-up“-Vereinigungsmodell [52] berechnet. Das statistische Weisskopf-Ewing-Modell [53] bildet die Grundlage zur Berechnung der Abregung des Kerns zur Erreichung des Gleichgewichtszustandes. Dieses Modell berücksichtigt Abgabe von Nukleonen, γ–Quanten und Komplexteilchen. Der große Vorteil dieses Rechencodes ist seine relative Einfachheit bei der Berechnung. Man benötigt zur Eingabe nur Kernladung und Masse sowie Projektilmasse und –ladung. Nach Festlegung des Energiebereichs berechnet dieser Rechencode die entsprechenden Wirkungsquerschnitte. Eine Berechnung von isomeren Zuständen ist mit Hilfe dieses Codes nicht möglich.

Die in dieser Arbeit beschriebenen Rechnungen wurden in enger Zusammenarbeit mit Herrn Dr. Yu. Shubin vom IPPE, Obninsk, Russland (inzwischen verstorben) durchgeführt.

4.2 EMPIRE II

EMPIRE II (Version 2.19) ist ein von Herman et al. [54] herausgegebener modularer Rechencode. Er besteht aus verschiedenen Rechencodes, deren Grundlage verschiedene Kernmodelle sind. Die Rechencodes beinhalten das sphärische optische Modell im Code SCAT 2 von Bersillon [55], das Exciton-Modell im Rechencode DEGAS von Betak und Obložinský [56] und zur Berechnung von Spaltbarrieren und Trägheitsmomenten dient das Programm BARMON von Sierk [57]. Weitere Einzelheiten und Codes können [54] entnommen werden.

Die in dieser Arbeit angegebenen Rechnungen wurden in enger Zusammenarbeit mit Herrn Dozent Dr. Sandor Sudár aus Debrecen, Ungarn durchgeführt.

5 Ergebnisse und Diskussion

5.1 Reaktionsschwellen

Vor der Untersuchung einer Kernreaktion muss die grundsätzliche Möglichkeit des Ablaufs der Reaktion untersucht werden. Dazu wurden die entsprechenden Daten (Q-Wert, Schwellenenergie, Coulombschwelle und daraus berechnete Reaktionsschwelle) für die in dieser Arbeit relevanten Reaktionen berechnet. Diese befinden sich nach Targetnuklid geordnet in den Tabelle 7 - 9. Auf Grund der Isotopenzusammensetzung von natürlichem Cer wurden nur die beiden in hohen Mengen auftretenden Isotope ^{140}Ce (88,5 %) und ^{142}Ce (11,1 %) als Targetnuklide berücksichtigt.

Tabelle 7: Übersicht über die Reaktionsschwellen am Targetelement ^{nat}Ce

Target-nuklid	Reaktion	Q-Wert [MeV]	Schwellen-energie [MeV]	Coulombschwelle[a] [MeV]		Reaktions-schwelle[b] [MeV]
				Eintritt	Austritt	
^{140}Ce	^{140}Ce(^{3}He,2n)^{141}Nd	-5,1	5,2	21,0		12
	^{140}Ce(^{3}He,3n)^{140}Nd	-12,9	13,2	21,0		16
	^{140}Ce(^{3}He,4n)^{139}Nd	-23,4	23,9	21,0		27
	^{140}Ce(^{3}He,tn)^{139}Pr	-11,3	11,6	21,0	10,9	ca. 27
	^{140}Ce(^{3}He,α)^{139}Ce	11,4	0,0	21,0	21,2	ca. 15
^{142}Ce	^{142}Ce(^{3}He,4n)^{141}Nd	-17,7	18,1	20,9		ca. 26
	^{142}Ce(^{3}He,5n)^{140}Nd	-25,5	26,0	20,9		> 30

[a]berechnet nach klassischer Methode

[b]in der Praxis ermittelte tatsächliche Reaktionsschwelle (Tunnel-Effekt!)

Tabelle 8: Übersicht über die Reaktionsschwellen am Targetelement ^{nat}Pr

Target-nuklid	Reaktion	Q-Wert [MeV]	Schwellen-energie [MeV]	Coulombschwelle[a] [MeV] Eintritt	Austritt	Reaktions-schwelle[b] [MeV]
^{141}Pr	$^{141}Pr(p,n)^{141}Nd$	-2,6	2.6	11,4		5
	$^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd$	-10,4	10.5	11,4		11
	$^{141}Pr(p,3n)^{139}Nd$	-20,9	21.1	11,4		22
	$^{141}Pr(p,t)^{139}Pr$	-8,9	8.9	11,4	11,5	
	$^{141}Pr(p,^{3}He)^{139}Ce$	-6,7	6,8	11,4	21,0	

Tabelle 9: Übersicht über die Reaktionsschwellen am Targetelement Osmium

Target-nuklid	Reaktion	Q-Wert [MeV]	Schwellen-energie [MeV]	Coulombschwelle[a] [MeV] Eintritt	Austritt	Reaktions-schwelle[b] [MeV]
^{192}Os	$^{192}Os(p,n)^{192}Ir$	-1,8	1,8	13,5		5
	$^{192}Os(p,3n)^{190}Ir$	-16,1	16,2	13,5		17
	$^{192}Os(^{3}He,2n)^{193m}Pt$	-2,6	2,7	25,3		
	$^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$	-17,5	17,8	25,3		20
	$^{192}Os(\alpha,n)^{195m}Pt$	-8,7	8,9	24,8		16,5
	$^{192}Os(\alpha,3n)^{193m}Pt$	-23,2	23,7	24,8		24
^{190}Os	$^{190}Os(^{3}He,2n)^{191}Pt$	-4,2	4,3	25,4		
	$^{190}Os(\alpha,n)^{193m}Pt$	-9,8	10,1	24,9		
	$^{190}Os(\alpha,3n)^{191}Pt$	-24,8	25,3	24,9		

[a]berechnet nach klassischer Methode

[b]in der Praxis ermittelte tatsächliche Reaktionsschwelle (Tunnel-Effekt!)

Bei allen in dieser Arbeit untersuchten Reaktionen wurde eine deutlich niedrigere Schwelle festgestellt als nach klassischen Berechnungen erwartet. Der Unterschied zwischen klassisch berechneter Reaktionsschwelle und tatsächlicher Schwelle liegt in der Quantenmechanik begründet. Da Kernreaktionen nach quantenmechanischen Mechanismen ablaufen, kann die tatsächliche Schwelle niedrigere Werte annehmen. Die Schwellenenergie muss jedoch in jedem Fall aufgebracht werden.

Im Folgenden sollen die Ergebnisse der Messung der Kernreaktionsdaten aufgelistet und mit experimentellen Daten der Literatur sowie den Ergebnissen der Kernmodellrechnungen verglichen werden.

5.2 Kernreaktionsdaten zur Produktion von ^{140}Nd

5.2.1 Daten der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)-Reaktionen

Die gemessenen Daten der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)-Reaktionen und des ^{nat}Ce(^{3}He,x)^{139}Ce Prozesses sind in Tabelle 10 aufgelistet. Da keine Literaturdaten vorlagen, konnte nur ein Vergleich mit den nach dem Rechencode ALICE-IPPE berechneten Daten unternommen werden. Dieser Rechencode ist bisher für die ^{3}He-induzierten Kernreaktionen nicht verwendet worden. Die hier berichteten Ergebnisse könnten daher für die Verbesserung des Kernmodells interessant sein.

^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{141}Nd Prozess

Das Radionuklid ^{141}Nd emittiert nur γ-Strahlung niedriger Intensität. Die Vernichtungsstrahlung konnte nicht zur Messung der Aktivität genutzt werden, da diese Art der Strahlung unspezifisch von allen Positronenstrahlern emittiert wird. Speziell das Nuklid ^{18}F, das über die ^{16}O(^{3}He,p)-Reaktion am Sauerstoff des Ceroxids gebildet wurde und eine ähnliche Halbwertszeit und hochintensive Vernichtungsstrahlung aufweist, verhinderte die Anwendung dieser Strahlungsart zur Bestimmung der Aktivität von ^{141}Nd. Aus diesem Grund wurde die 1127 keV γ-Linie zur Berechnung der Aktivität genutzt. Wegen der sehr niedrigen Intensität dieser Linie (0,8 %) ist die Unsicherheit bei der Peakflächenbestimmung höher als bei

anderen Aktivitätsmessungen. Dies wurde in Tabelle 10 berücksichtigt.

Tabelle 10: Wirkungsquerschnitte der $^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{141,140,139}Nd$ und $^{nat}Ce(^{3}He,x)^{139}Ce$ Reaktionen

Projektilenergie	Wirkungsquerschnitt [mb]			
[MeV]	$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{141}Nd$	$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd$	$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{139}Nd$	$^{nat}Ce(^{3}He,x)^{139}Ce$
35,2 ± 0,5	142 ± 28		539 ± 162	
35,0 ± 0,5		442 ± 75		377 ± 57
34,2 ± 0,5	131 ± 26			
34,0 ± 0,5		545 ± 93		330 ± 50
33,8 ± 0,5	126 ± 25		344 ± 103	
33,2 ± 0,5			252 ± 76	
32,9 ± 0,5		606 ± 103		227 ± 34
32,8 ± 0,5	192 ± 38			
32,0 ± 0,5	230 ± 46		313 ± 94	
31,7 ± 0,6		592 ± 101		167 ± 25
30,4 ± 0,6		624 ± 106	76 ± 23	78 ± 12
29,7 ± 0,6	138 ± 28			
29,1 ± 0,7			76 ± 23	
28,2 ± 0,7		665 ± 113		36 ± 2
27,7 ± 0,7			9 ± 3	
27,0 ± 0,7		613 ± 104		17 ± 3
26,6 ± 0,6	181 ± 36			
26,1 ± 0,7		818 ± 139		15 ± 2
24,1 ± 0,5		641 ± 109		
23,4 ± 0,5		410 ± 70		7 ± 1
23,0 ± 0,7	173 ± 35			
22,0 ± 0,5		234 ± 40		5 ± 1
21,5 ± 0,7	180 ± 36			
20,8 ± 0,6		196 ± 33		6 ± 1
19,8 ± 0,8	247 ± 49			
18,6 ± 0,8	173 ± 35			
18,3 ± 0,7		104 ± 18		3 ± 0.5
17,7 ± 0,8		139 ± 24		6 ± 1
17,6 ± 0,8		80 ± 14		3 ± 0.5
17,4 ± 0,8	38 ± 8			
16,9 ± 0,8		91 ± 15		
16,5 ± 0,9	60 ± 12			5 ± 1
16,3 ± 0,9	104 ± 21			
16,0 ± 0,8		23 ± 4		
15,9 ± 0,9		11 ± 2		
15,0 ± 0,9	59 ± 12			

Abbildung 19 stellt die erhaltenen experimentellen Ergebnisse zusammen mit denen der Kernmodellrechnungen dar. Eine Reaktionsschwelle von 12 MeV und zwei Maxima bei 19 und 24 MeV können bei den experimentellen Ergebnissen abgelesen werden. Die beiden Maxima entstehen durch die Überlagerung zweier Reaktionen, nämlich der ^{140}Ce(^{3}He,2n)- und ^{142}Ce(^{3}He,4n)-Prozesse. Zwischen den experimentellen und theoretisch berechneten Werten besteht eine gute Übereinstimmung was den Trend betrifft.

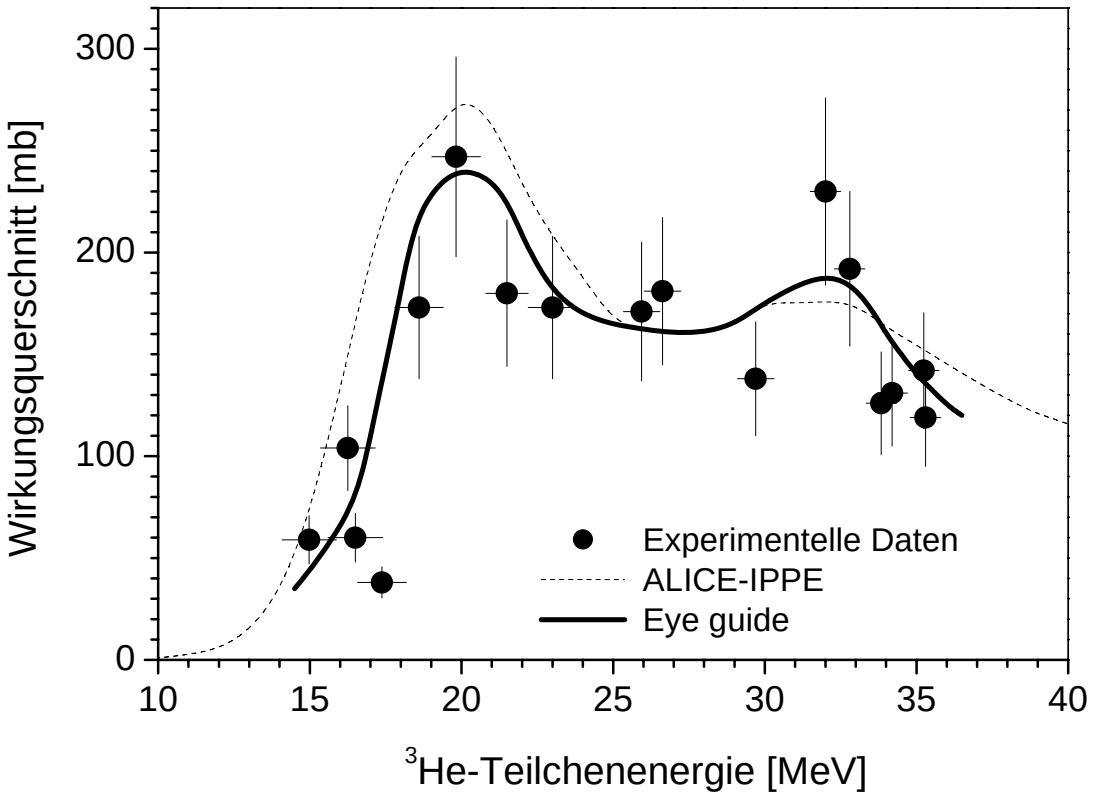

Abbildung 19: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{141}Nd Reaktion

$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd$ Prozess

Die Ergebnisse dieser Reaktion sind in Abbildung 20 zu sehen. Die experimentell erhaltene Reaktionsschwelle liegt bei ca. 16 MeV und das Maximum des Wirkungsquerschnitts in einer Höhe von 800 mb bei etwa 27 MeV. Bis etwa 27 MeV kann die Bildung von ^{140}Nd hauptsächlich auf die $^{140}Ce(^{3}He,3n)^{140}Nd$ Reaktion zurückgeführt werden. Bei höheren Energien kann auch die $^{142}Ce(^{3}He,5n)^{140}Nd$ Reaktion einen Beitrag leisten. Vergleicht man diese Ergebnisse mit den Berechnungen nach ALICE-IPPE, so wird eine Übereinstimmung erkannt, besonders im Bereich von der Schwelle bis etwa 26 MeV. Oberhalb dieser Energie und im Bereich der Reaktionsschwelle weichen die Daten etwas ab. Die berechnete Schwelle ist höher und bei Energien oberhalb 27 MeV liegen die berechneten Daten etwa 20 – 30 % höher als die experimentellen Daten.

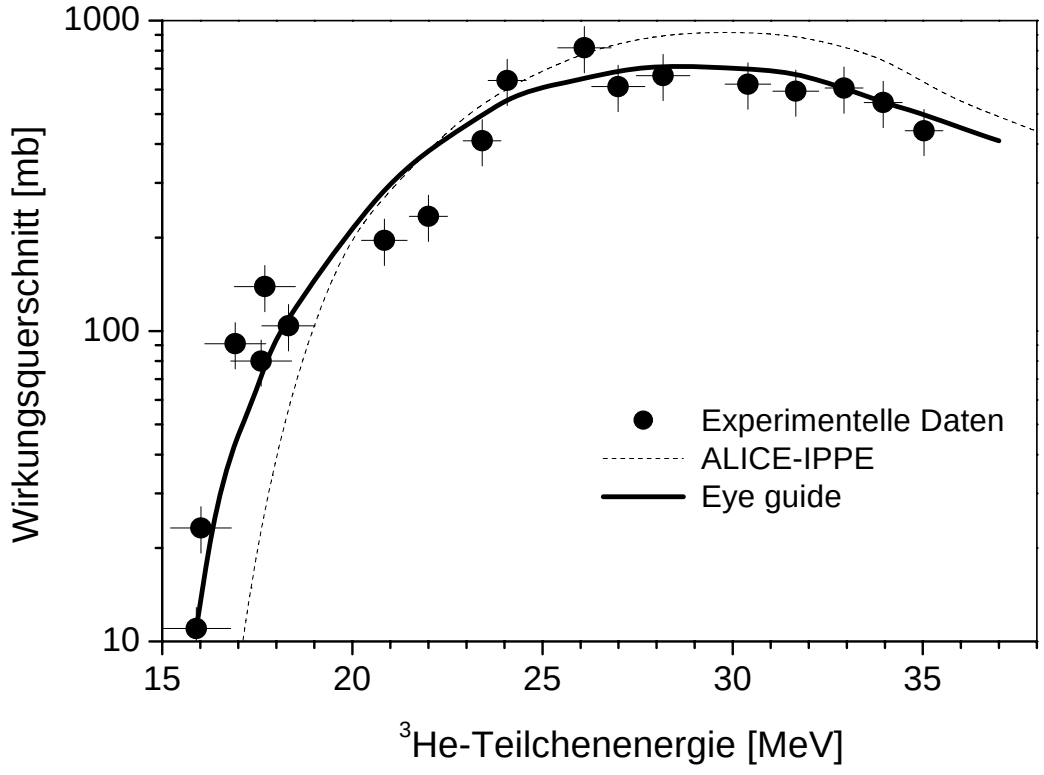

Abbildung 20: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die $^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd$ Reaktion

$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{139}Nd$ Prozess

An dieser Stelle soll nur der Gesamtwirkungsquerschnitt von $^{139m+g}Nd$ betrachtet werden. Dazu wurden die Aktivitäten beider isomerer Zustände gemessen und daraus unabhängige Wirkungsquerschnitte berechnet. Zudem musste die Aktivität des Grundzustandes korrigiert werden, da ^{139m}Nd zu 11,8 % in den Grundzustand zerfällt. Durch diese Berechnungen und die Addition zweier fehlerbehafteter Wirkungsquerschnitte erhöhte sich die Gesamtunsicherheit auch hier. Die Ergebnisse von Experiment und Kernmodellrechnungen sind in Abbildung 21 dargestellt. Im untersuchten Energiebereich konnte kein Maximum festgestellt werden, die Reaktionsschwelle wurde zu etwa 27 MeV bestimmt. Die Bildung dieser isomeren Zustände geschieht in diesem Bereich ausschließlich nach dem $^{140}Ce(^{3}He,4n)^{139}Nd$ Mechanismus, was auch gut durch ALICE-IPPE wiedergegeben wird.

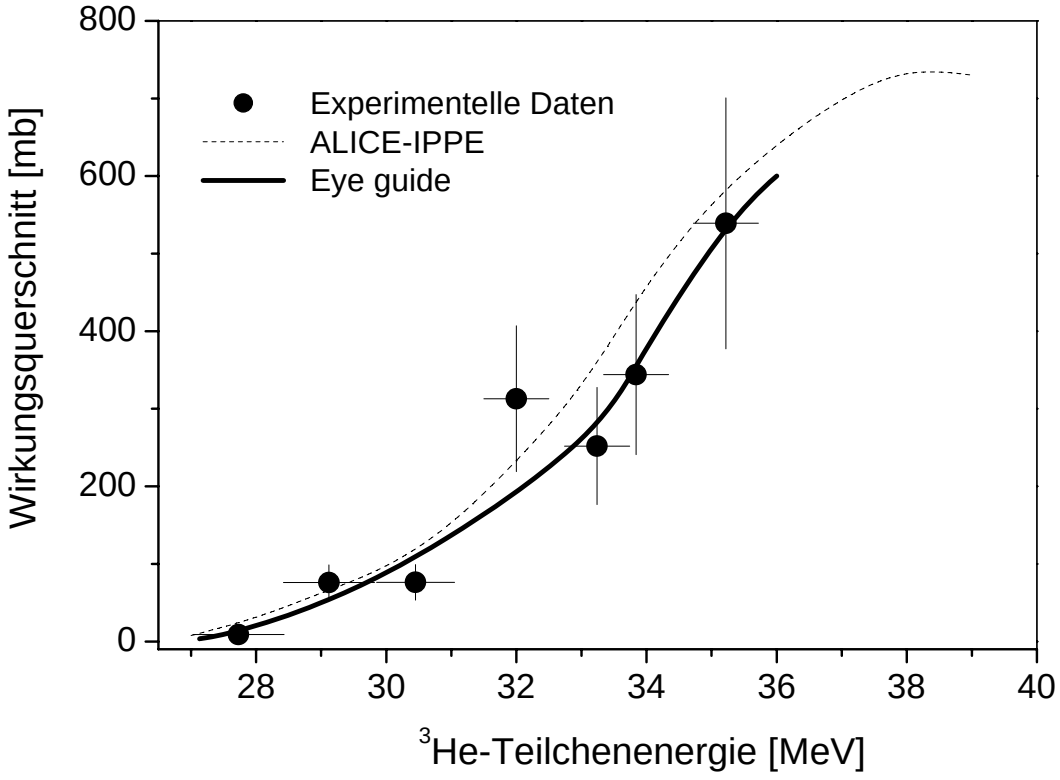

Abbildung 21: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die $^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{139}Nd$ Reaktion

^{nat}Ce(^{3}He,x)^{139}Ce Prozess

Die Wirkungsquerschnitte, die in dieser Arbeit für die Bildung von ^{139}Ce angegeben werden, sind kumulative Wirkungsquerschnitte der folgenden Prozesse: ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{139}Nd, ^{nat}Ce(^{3}He,x)^{139}Pr und ^{nat}Ce(^{3}He,x)^{139}Ce, wobei die ersten beiden gebildeten Nuklide ^{139}Nd und ^{139}Pr zu ^{139}Ce zerfallen. Die Rechnungen mit dem Code ALICE-IPPE basieren auf den gleichen Reaktionen. In Abbildung 22 sind die Ergebnisse sowohl der experimentellen Messungen als auch der theoretischen Rechnungen dargestellt. Man erkennt eine Reaktionsschwelle von ungefähr 16 MeV, aber im untersuchten Energiebereich kein Maximum. Die theoretischen Rechnungen weichen ab etwa 28 MeV nach oben ab, wie auch schon bei der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd Reaktion zu beobachten war.
Außerdem wird aus einem Vergleich mit Abbildung 21 ersichtlich, dass zur Bildung von ^{139}Ce im untersuchten Energiebereich hauptsächlich die ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{139}Nd Reaktion, besonders im Energiebereich oberhalb 27 MeV, beiträgt.

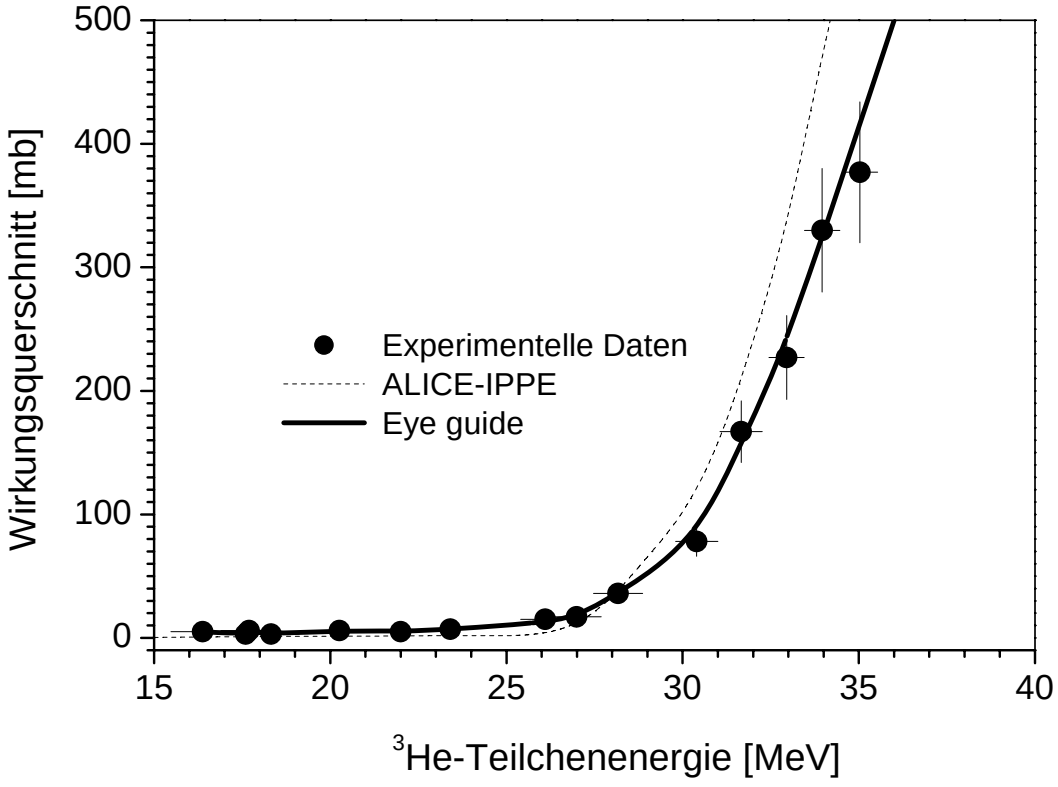

Abbildung 22: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die ^{nat}Ce(^{3}He,x)^{139}Ce Reaktionen

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment für eine erste Rechnung gut ist. Abweichungen und damit Ungenauigkeiten der Kernmodellrechnungen sind jedoch zu erkennen. Das Exciton-Modell, das dem Rechencode ALICE-IPPE zugrunde liegt, gibt die ^{3}He-induzierten Reaktionen nur unzureichend wieder. Möglicherweise ist die Energie des ^{3}He-Kerns mit ca. 15 MeV [1] so hoch, das aus dem Projektil durch Wechselwirkung mit dem Kern Nukleonen vor der eigentlichen Kernreaktion herausgelöst werden können. Dadurch kann es zur Überschätzung der tatsächlichen Höhe der Wirkungsquerschnitte durch die Modellrechnungen kommen.

Systematik der Anregungsfunktionen der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)-Reaktionen

In Abbildung 23 sind die drei in dieser Arbeit untersuchten ^{nat}Ce(^{3}He,xn)-Reaktionen zusammengefasst. Es handelt sich dabei um die „Eye Guide“ Kurven aus den Abbildungen 19 bis 21. Es lässt sich erkennen, dass die Form dieser Reaktionen grob vergleichbar ist und die Peaks breiter sind im Vergleich zu den ^{141}Pr(p,xn)-Reaktionen (siehe Abbildung 29). Vergleicht man die (^{3}He,3n)- und die (^{3}He,4n)-Reaktion, miteinander, so sind diese Reaktionen sich in der Form der Anregungsfunktion sehr ähnlich. Der Anstieg der Funktion ist ähnlich steil. Extrapoliert man die (^{3}He,4n)-Reaktion (siehe Abbildung 21) weiter, so erhält man wahrscheinlich ein ähnlich hohes Maximum. Der Unterschied in den Reaktionsschwellen ist etwas größer als man aus der Systematik erwarten sollte, nach der der Unterschied etwa der Bindungsenergie eines Neutrons (ca. 8 MeV) entsprechen sollte. Die Lage der Maxima dieser beiden Reaktionen zueinander entspricht etwa dem, was nach der Systematik zu erwarten ist, sofern die Extrapolation korrekt ist. Verglichen mit diesen beiden Reaktionen weist die (^{3}He,2n)-Reaktion ein viel niedrigeres Maximum von nur etwa einem Drittel des Werts der (^{3}He,3n)-Reaktion auf. Dies entspricht der Systematik von (^{3}He,xn)-Reaktionen in diesem Massenbereich, wonach die Wirkungsquerschnitte von (^{3}He,2n)-Reaktionen niedriger sind als die der (^{3}He,3n)-Reaktionen. Die Lage dieses Maximums liegt verglichen mit der Lage des Maximums der (^{3}He,3n)-Reaktion in etwa da, wo man es bei gleicher Form nach der Systematik (siehe oben) erwarten sollte. Die experimentell gefundene Reaktionsschwelle ist jedoch verglichen mit der Schwelle der (^{3}He,3n)-Reaktion sehr hoch bzw. die der (^{3}He,3n)-Reaktion sehr niedrig. Hier wird die Tendenz nicht bestätigt. Es bleibt noch zu erwähnen, dass es sich bei der als (^{3}He,2n)-Reaktion bezeichneten Reaktion um eine Überlagerung aus den beiden Reaktionen ^{140}Ce(^{3}He,2n)^{141}Nd und ^{142}Ce(^{3}He,4n)^{141}Nd handelt. Daher ist zu

einem Vergleich nur das erste Maximum herangezogen worden. Außerdem bleibt das Problem der Vergleichbarkeit der Reaktionen, da die (^{3}He,4n) nicht bis zum Maximum untersucht werden konnte. Insgesamt lässt sich jedoch sagen, dass die untersuchten Reaktionen die erwartete Systematik für (^{3}He,xn)-Reaktionen in diesem Massenbereich gut widerspiegeln.

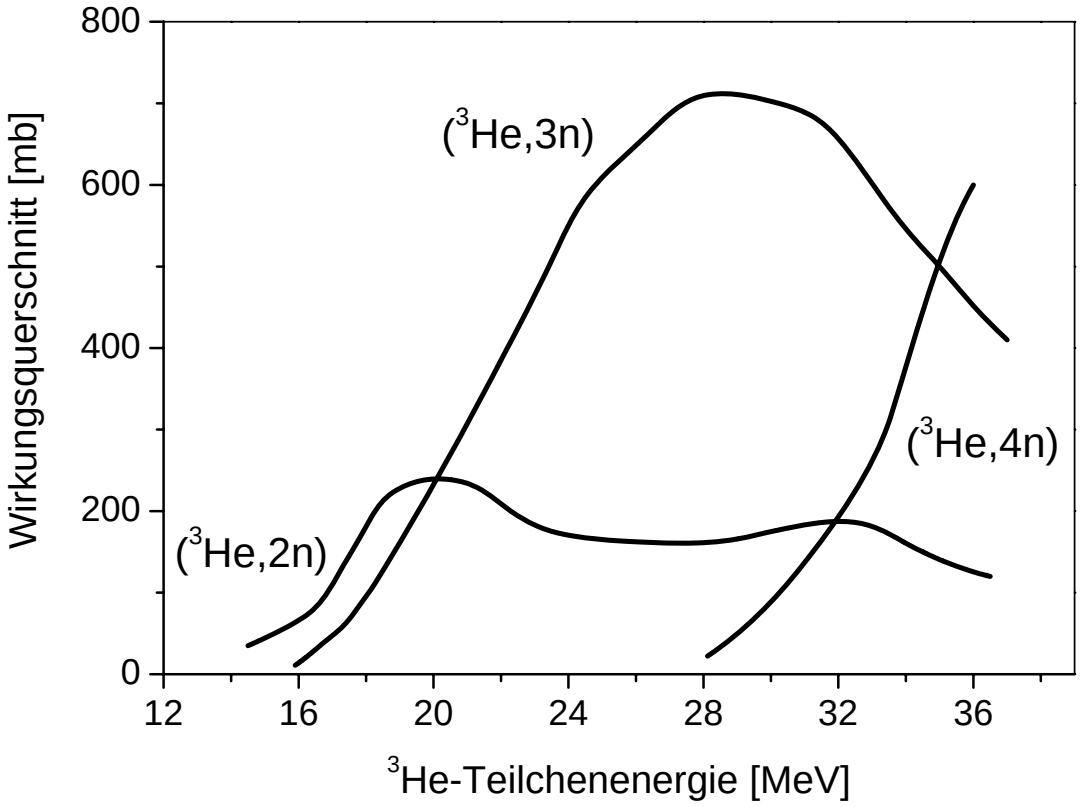

Abbildung 23: Systematik der Anregungsfunktionen der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)-Reaktionen

Ausbeuterechnung

Die integralen Ausbeuten der Neodymisotope bei den $^{nat}Ce(^{3}He,xn)$-Reaktionen, die aus den „Eye guide“ Kurven der Anregungsfunktionen (Abbildung 19 – 21) gemäß Abschnitt 3.2 berechnet wurden, sind in Tabelle 11 aufgeführt und in Abbildung 24 dargestellt.

Bedingungen für die Produktion von ^{140}Nd

Zur Produktion von ^{140}Nd steht der gesamte Energiebereich von der Reaktionsschwelle bis zur maximalen Energie zur Verfügung, da alle anderen Radionuklide des Neodyms kurzlebiger sind als ^{140}Nd. Es muss außerdem auch kein isotopenangereichertes Material verwendet werden. Daher steht der Nutzung des ganzen Energiebereichs nichts im Wege. Bei der Aufarbeitung des Targets muss jedoch darauf geachtet werden, dass das gesamte gebildete ^{139}Nd zum Zeitpunkt der Abtrennung des Radioneodyms komplett zu ^{139}Ce zerfallen ist, da sich dieses sonst in der abgetrennten Probe befinden würde und zu einer ungewollten Strahlendosis führen würde.

Tabelle 11: Integrale Ausbeuten der $^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{141,140,139}Nd$ Reaktionen

Energie	Integrale Ausbeute [MBq/µA•h]		
[MeV]	$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{141}Nd$	$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd$	$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{139}Nd$
36	127,75	12,34	40,10
35	120,49	11,61	27,94
34	112,76	10,81	18,49
33	104,78	9,97	12,04
32	96,97	9,04	7,47
31	89,52	8,06	4,24
30	82,45	7,09	2,06
29	75,88	6,13	0,77
28	69,68	5,18	0,14
27	63,80	4,29	
26	58,08	3,49	
25	52,10	2,77	
24	45,18	2,09	
23	36,71	1,50	
22	27,73	1,03	
21	19,67	0,65	
20	13,18		
19	8,49		
18	5,24		
17	2,96		
16	1,48		
15	0,55		

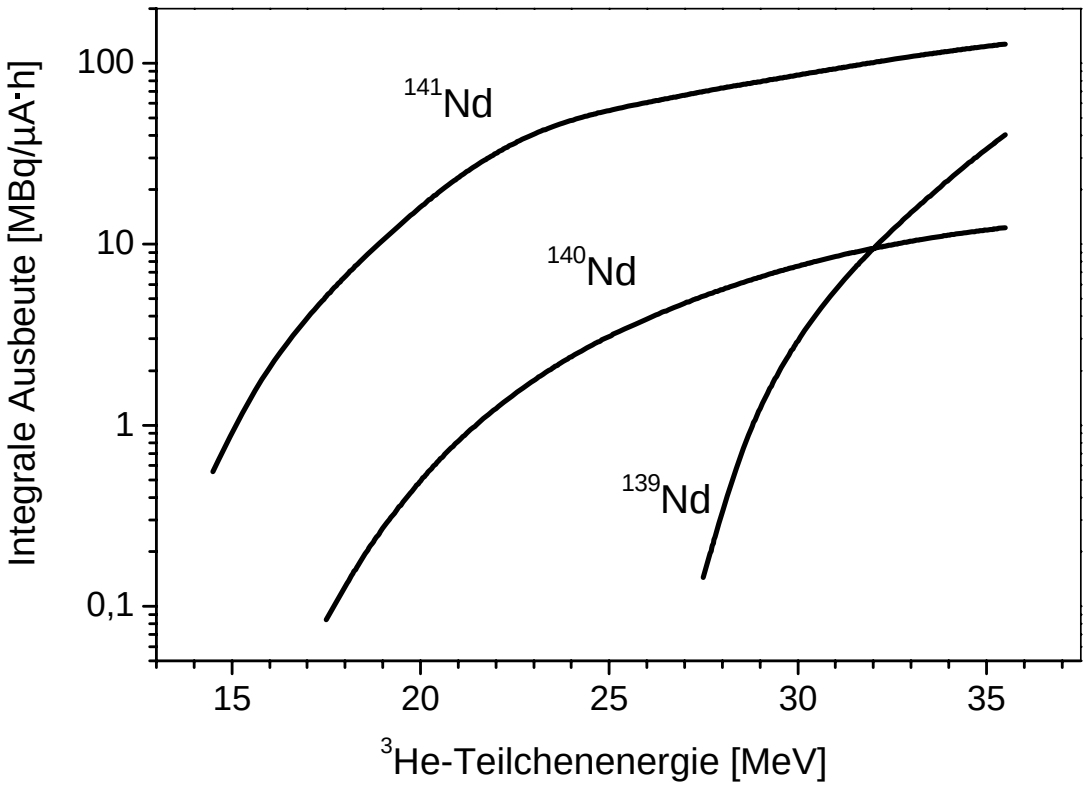

Abbildung 24: Integrale Ausbeute der Neodymisotope bei den ^{3}He-induzierten Kernreaktionen an Cer

5.2.2 Daten der ^{141}Pr(p,xn)-Reaktionen

Die Ergebnisse der Kerndatenmessungen der ^{141}Pr(p,xn) Reaktionen und des ^{141}Pr(p,x)^{139}Ce Prozesses sind in Tabelle 12 aufgelistet.

^{141}Pr(p,n)^{141}Nd Reaktion

Im Gegensatz zu den Kerndatenmessungen der ^{3}He-induzierten Reaktionen konnten zur Aktivitätsbestimmung des ^{141}Nd in diesem Fall sowohl die Vernichtungsstrahlung als auch die γ-Linie bei 1127 keV genutzt werden. Beide Methoden ergaben übereinstimmende Resultate. Es bildete sich nicht so viel ^{18}F bei dieser Reaktion, da an natürlichem Sauerstoff

die $^{18}O(p,n)$-Reaktion kaum zur ^{18}F-Produktion beiträgt (^{18}O kommt in ^{nat}O in nur zu 0,2 % vor).

Tabelle 12: Wirkungsquerschnitte der $^{141}Pr(p,xn)^{141,140,139}Nd$ und $^{141}Pr(p,x)^{139}Ce$ Reaktionen

Projektil-energie [MeV]	Wirkungsquerschnitt [mb]			
	$^{141}Pr(p,n)^{141}Nd$	$^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd$	$^{141}Pr(p,3n)^{139}Nd$	$^{141}Pr(p,x)^{139}Ce$
44,8 ± 0,2		135 ± 20	116 ± 35	521 ± 78
43,8 ± 0,2		67 ± 10	208 ± 62	394 ± 59
42,1 ± 0,3		132 ± 20		
41,6 ± 0,3		184 ± 28	438 ± 131	632 ± 95
41,6 ± 0,3				542 ± 81
40,0 ± 0,3		154 ± 23		
39,1 ± 0,4		125 ± 19	474 ± 142	653 ± 98
39,0 ± 0,4		105 ± 16		595 ± 89
37,6 ± 0,5		88 ± 13		776 ± 116
36,7 ± 0,5		160 ± 24		989 ± 148
35,0 ± 0,5		132 ± 20		906 ± 136
34,9 ± 0,5		168 ± 25		901 ± 135
34,3 ± 0,5		159 ± 24		1067 ± 160
32,9 ± 0,6		212 ± 32	789 ± 237	
30,9 ± 0,6		226 ± 34		1021 ± 153
30,4 ± 0,6		261 ± 39	1017 ± 305	1103 ± 165
29,8 ± 0,6		358 ± 54		
29,5 ± 0,7		122 ± 18	720 ± 216	
29,3 ± 0,7		273 ± 41		
27,0 ± 0,7		521 ± 125		745 ± 112
26,6 ± 0,7		1029 ± 154	567 ± 170	922 ± 138
25,3 ± 0,8		1182 ± 177	379 ± 114	429 ± 64
23,8 ± 0,9			17 ± 5	88 ± 13
23,3 ± 0,9		1292 ± 194		
21,0 ± 1,0		1174 ± 176	1.2 ± 0.4	
21,0 ± 1,0		1366 ± 205		
20,0 ± 1,0		910 ± 137		
19,3 ± 0,2		833 ± 125		
18,1 ± 0,3		923 ± 139		
18,0 ± 1,0		722 ± 108		
17,1 ± 0,3	87 ± 13			
16,9 ± 0,4		826 ± 124		
15,5 ± 0,5		590 ± 89		
15,1 ± 0,2		283 ± 43		
14,3 ± 0,3	346 ± 52	494 ± 74		
13,9 ± 0,6		417 ± 63		
13,6 ± 0,3	325 ± 49			
12,9 ± 0,4	351 ± 53			
12,5 ± 0,4		19 ± 3		
12,3 ± 0,4	599 ± 90			
11,5 ± 0,5	577 ± 87			
11,4 ± 0,5	409 ± 61			
10,6 ± 0,6		21 ± 3		
10,4 ± 0,7	295 ± 44			
10,2 ± 0,6	418 ± 63			
10,0 ± 0,4	347 ± 52			
9,8 ± 0,7	264 ± 40			
8,0 ± 0,5	51 ± 8			

Abbildung 25 gibt einen Überblick über die experimentellen und theoretischen Ergebnisse sowie über die Literatur. Die Reaktionsschwelle wurde zu 5 MeV bestimmt und es liegt ein Maximum von etwa 600 mb bei 12 MeV vor. Die experimentellen Resultate dieser Arbeit sind in Übereinstimmung mit den Daten von Olkowsky et al. [58] im niederen Energiebereich und mit denen von Gritsyna et al. [59] im höheren Energiebereich. Die Daten von Hogan [33] weichen stark von den anderen Ergebnissen ab. Die mit dem Code ALICE-IPPE berechneten Ergebnisse stimmen mit den experimentellen Ergebnissen im Bereich des Maximums überein. Sie sind außerdem in Übereinstimmung mit den Daten von Hogan [33] und Gritsyna et al. [59], aber nicht mit den anderen Ergebnissen [58 und diese Arbeit]. Verglichen mit allen experimentellen Daten außer denen von Hogan [33] erhält man aus den theoretischen Berechnungen einen breiteren absteigenden Ast der Anregungsfunktion. Oberhalb des Maximums scheint das Exciton-Modell den Verlauf nicht gut wiederzugeben.

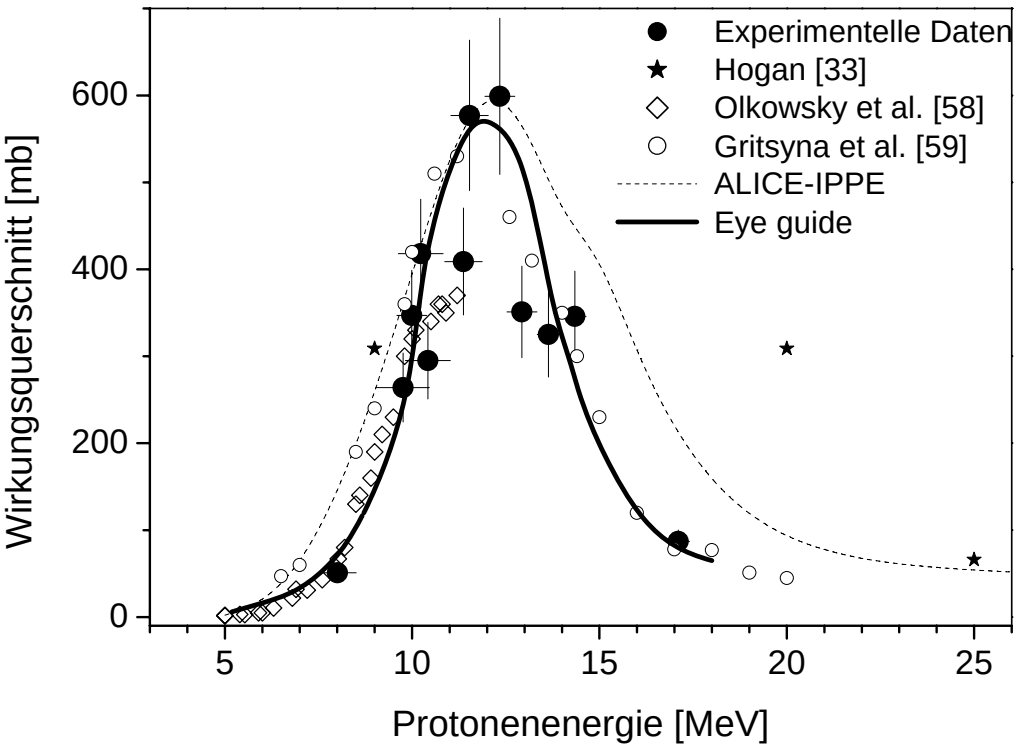

Abbildung 25: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die $^{141}Pr(p,n)^{141}Nd$ Reaktion

$^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd$ Reaktion

Die Ergebnisse sowohl der Messungen als auch die der Rechnungen sind zusammen mit den Literaturdaten in Abbildung 26 dargestellt. Es ergibt sich eine Reaktionsschwelle von ungefähr 11 MeV. Das Maximum liegt um 20 MeV und hat einen Wert von ca. 1300 mb. Die Daten von Zeisler und Becker [34] stimmen gut mit den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit überein (außer ganz in der Nähe der Schwelle) und die Daten von Hogan [33] sind wie schon bei der $^{141}Pr(p,n)^{141}Nd$ Reaktion höher als die der anderen Quellen. Die Übereinstimmung zwischen den experimentellen Ergebnissen und den theoretischen Rechnungen ist überzeugend, besonders ab 20 MeV, wenn auch hier leichte Unterschiede in der Nähe der Schwelle auftreten.

Die gesamte Anregungsfunktion wurde an den beiden Zyklotronen bestimmt. Die Übereinstimmung im überlappenden Energiebereich erhöht das Vertrauen in die Richtigkeit der Daten. Zudem benutzten Zeisler und Becker [34] eine andere Methode zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte. Bei dieser Methode wurde ein dickes Pellet mit einem Strahl geladener Teilchen bekannter Anfangsenergie bestrahlt. Danach wurde das bestrahlte Pellet in dünne Schichten zersägt. Die Anregungsfunktion kann dadurch bestimmt werden, dass die Energiedegradierung in jeder dünnen Schicht zu einer niedrigeren Energie führt. Auch die Übereinstimmung mit den nach einer anderen Methode und unabhängig von dieser Arbeit erhaltenen Daten führt zu einer Stärkung der Ergebnisse. Dadurch können diese Daten dazu dienen, mit hoher Zuverlässigkeit die Ausbeute an ^{140}Nd gemäß dieser Reaktion zu berechnen.

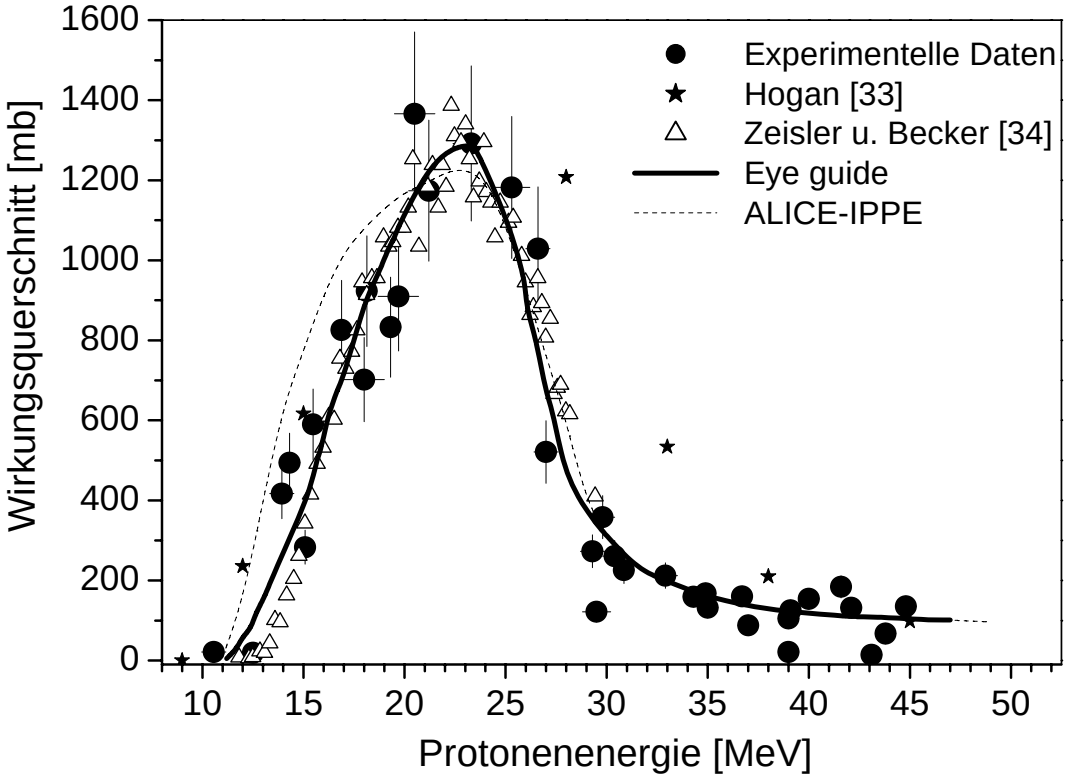

Abbildung 26: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd Reaktion

^{141}Pr(p,3n)^{139}Nd Reaktion

Die Messergebnisse zu dieser Reaktion sind zusammen mit den Literaturdaten in Abbildung 27 dargestellt. Auch hier stellt der Wirkungsquerschnitt von ^{139}Nd die Summe der beiden isomeren Zustände dar. Die Reaktionsschwelle dieser Reaktion lag bei 22 MeV und ein Maximum von ca. 1000 mb war bei 32 MeV zu erkennen. Bis auf einen Punkt von Hogan [33] stimmen theoretische Rechnungen und alle experimentellen Datensätze überein.

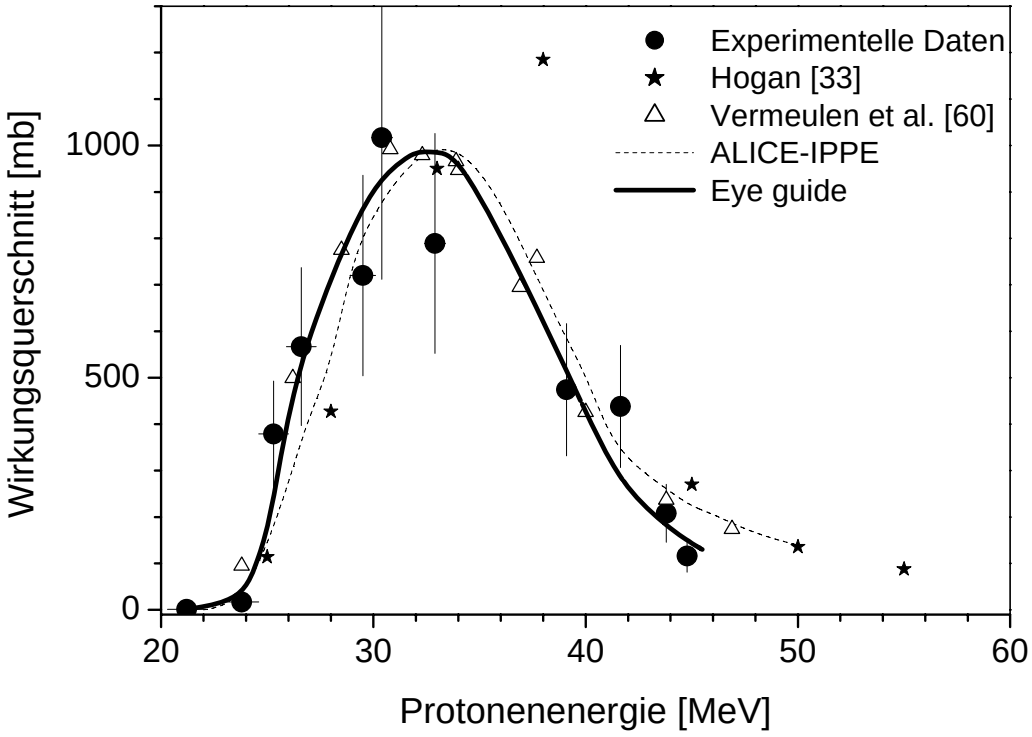

Abbildung 27: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die ^{141}Pr(p,3n)^{139}Nd Reaktion

^{141}Pr(p,x)^{139}Ce Prozess

Auch bei der protoneninduzierten Bildung von ^{139}Ce ist der gemessene Wirkungsquerschnitt ein kumulativer Wirkungsquerschnitt. In diesem Fall tragen folgende Reaktionen zur Bildung von ^{139}Ce bei: ^{141}Pr(p,3n)^{139}Nd, ^{141}Pr(p,x)^{139}Pr und ^{141}Pr(p,x)^{139}Ce. ALICE-IPPE wurde ebenfalls für die Berechnung der Wirkungsquerschnitte dieser Reaktionen verwendet. Die Ergebnisse dieser Arbeit und die Literaturdaten befinden sich in Abbildung 28. Die Reaktionsschwelle liegt bei etwa 22 MeV und ein maximaler Wirkungsquerschnitt von ca. 1200 mb bei einer Energie von 32 MeV ist zu erkennen. Die theoretischen Berechnungen und die experimentellen Datensätze stimmen gut überein; nur im Bereich des Maximums weisen die Daten von Vermeulen et al. [60] eine bessere Übereinstimmung mit der Theorie auf.

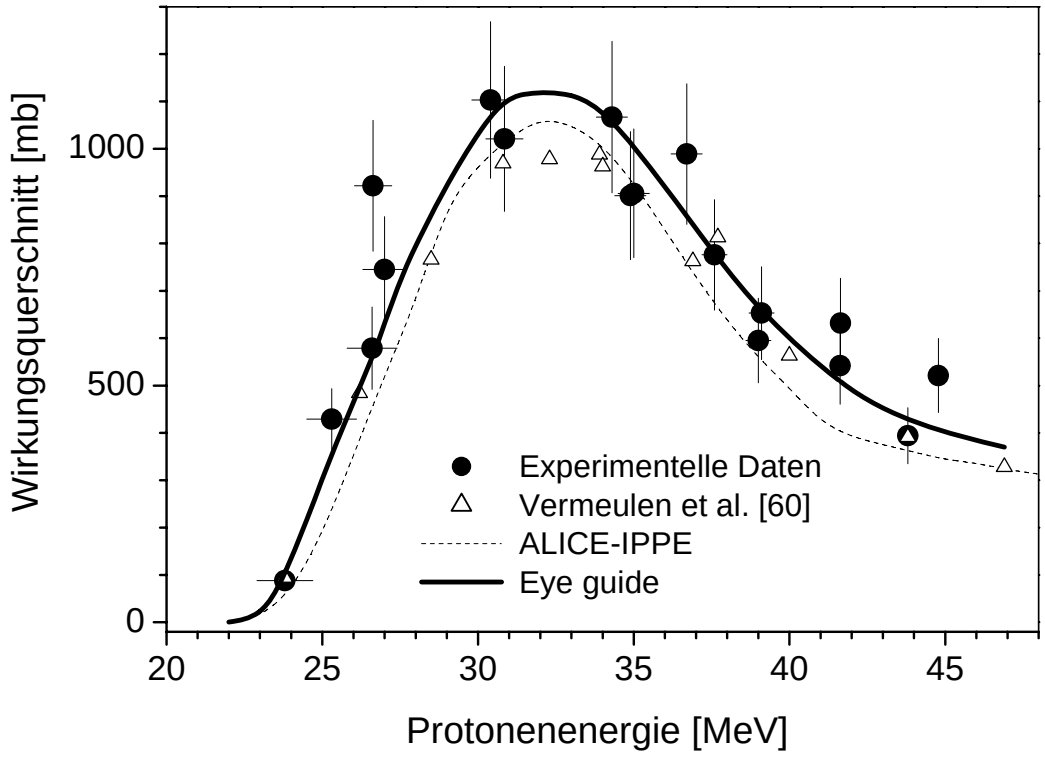

Abbildung 28: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die ^{141}Pr(p,x)^{139}Ce Reaktionen

Systematik der Anregungsfunktionen der ^{141}Pr(p,xn)-Reaktionen

In Abbildung 29 sind die Daten der drei in dieser Arbeit untersuchten ^{141}Pr(p,xn)-Reaktionen zusammengefasst. Es handelt sich dabei um die „Eye guide“ Kurven aus den Abbildungen 25 bis 27. Bei diesen Reaktionen stimmt die Form ziemlich gut überein. Der Unterschied in den experimentell erhaltenen Reaktionsschwellen ist auch hier bei den ersten beiden Reaktionen kleiner als bei den zweiten beiden Reaktionen. Die Lage der Maxima der Anregungsfunktionen entspricht in etwa der erwarteten Systematik, nach der zwischen den Maxima, wie bei den Reaktionsschwellen, ein Unterschied von etwa der Bindungsenergie eines Neutrons (ca. 8 MeV) liegen sollte. Zwischen den Maxima der (p,2n)- und der (p,3n)-Reaktion liegen, wie bei den Reaktionsschwellen, etwa 12 MeV. Der Unterschied der

Reaktionsschwellen stimmt jedoch gut mit dem theoretisch berechneten Unterschied überein (siehe Tabelle 8). Das Maximum der (p,2n)-Reaktion ist ca. doppelt so hoch wie das der und das der (p,3n)-Reaktion ist höher als das der (p,n)-Reaktion, aber kleiner als das der (p,2n)-Reaktion. Diese Tendenz entspricht der Systematik von (p,xn)-Reaktionen in diesem Massenbereich. Insgesamt lässt sich also feststellen, dass die untersuchten Reaktionen die erwartete Systematik der (p,xn)-Reaktionen in diesem Massenbereich gut widerspiegeln.

Ausbeuterechnung

Die integralen Ausbeuten der Neodymisotope bei den ^{141}Pr(p,xn)-Reaktionen, die aus den „Eye guide“ Kurven der Anregungsfunktionen (Abbildung 25 – 27) gemäß Abschnitt 3.2 berechnet wurden, sind in Tabelle 13 aufgeführt und in Abbildung 30 zu sehen.

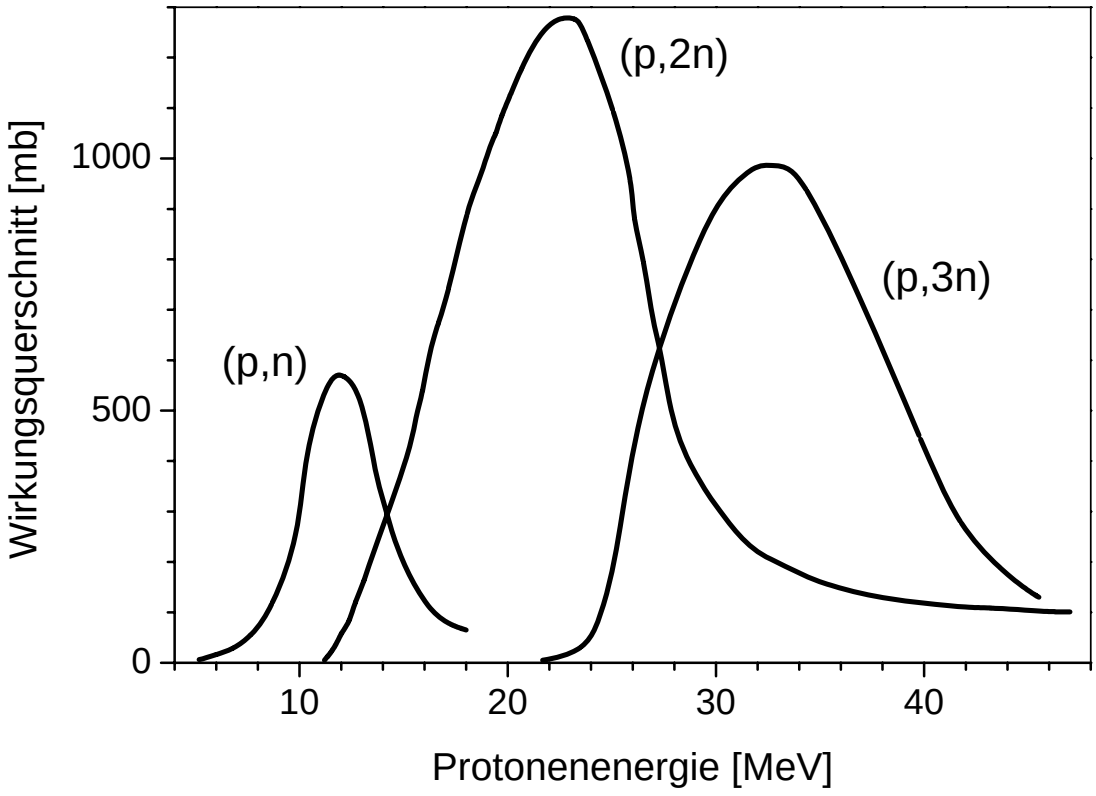

Abbildung 29: Systematik der Anregungsfunktionen der ^{141}Pr(p,xn)-Reaktionen

Bedingungen für die Produktion von ^{140}Nd

Zur Produktion von ^{140}Nd mit Protonen an Praseodym gilt das gleiche, was schon für die Produktion mit ^{3}He-Teilchen an Cer gesagt wurde, d. h. der ganze Energiebereich kann genutzt werden, da alle anderen Radionuklide des Neodyms kurzlebiger sind. Es muss auch bei der Produktion von ^{140}Nd mit Protonen darauf geachtet werden, dass ^{139}Nd vor der Abtrennung des Radioneodyms komplett zu ^{139}Ce zerfallen ist.

Tabelle 13: Integrale Ausbeuten der ^{141}Pr(p,xn)^{141,140,139}Nd Reaktionen

Energie	Integrale Ausbeute [MBq/µA•h]		
[MeV]	^{141}Pr(p,n)^{141}Nd	^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd	^{141}Pr(p,3n)^{139}Nd
44,5		321,74	4702,51
43,5		313,58	4609,19
42,5		306,79	4510,19
41,5		300,67	4402,37
40,5		295,34	4277,76
39,5		290,56	4122,47
38,5		286,23	3929,99
37,5		282,30	3705,10
36,5		278,68	3450,05
35,5		275,29	3163,58
34,5		272,11	2851,74
33,5		269,09	2515,13
32,5		266,22	2153,28
31,5		263,44	1781,79
30,5		260,79	1420,84
29,5		258,26	1086,49
28,5		249,94	793,40
27,5		241,83	545,74
26,5		231,25	342,84
25,5		216,94	183,03
24,5		195,00	71,62
23,5		170,77	16,43
22,5		145,37	5,33
21,5		121,30	1,83
20,5		98,33	
19,5	1199,42	76,97	
18,5	1175,05	58,56	
17,5	1147,63	43,58	
16,5	1115,86	29,86	
15,5	1071,46	18,11	
14,5	996,09	9,14	
13,5	882,48	3,34	
12,5	718,85	0,61	
11,5	514,46	0,12	
10,5	316,63		
9,5	172,66		
8,5	79,42		
7,5	28,51		
6,5	7,40		
5,5	0,99		

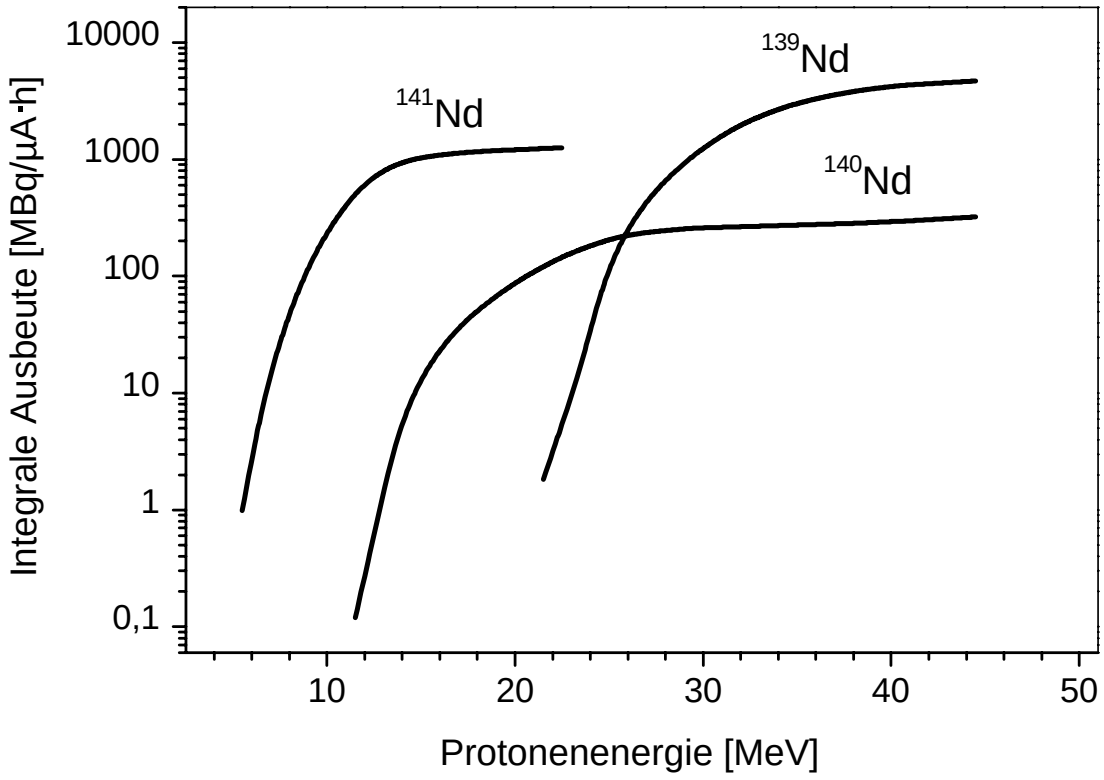

Abbildung 30: Integrale Ausbeute der Neodymisotope bei den protoneninduzierten Kernreaktionen an Praseodym

5.2.3 Vergleich der in dieser Arbeit untersuchten Produktionsmethoden für ^{140}Nd

In Tabelle 14 sind die Parameter für die beiden Produktionsmethoden ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd und ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd aufgelistet und in Abbildung 31 vergleichend graphisch dargestellt. Die Ergebnisse können folgendermaßen zusammengefasst werden. Betrachtet man die isotope Verunreinigung, so unterscheiden sich die beiden Reaktionen nicht, da zum Zeitpunkt der Anwendung die anderen Isotope des Neodyms zerfallen sind. Daher kann in beiden Fällen der gesamte Energiebereich zur Produktion genutzt werden. An Abbildung 31 kann sehr deutlich abgelesen werden, das die Ausbeute an ^{140}Nd bei der protoneninduzierten Kernreaktion mehr als eine Größenordnung höher ist (20 mal mehr). Ein weiterer Punkt, der sich zu vergleichen lohnt, ist die chemische Abtrennung des produzierten ^{140}Nd vom Targetmaterial. In beiden Fällen ist die Abtrennung mit hohem Aufwand verbunden, da die Lanthanoide nur schwer

voneinander zu trennen sind [21,34]. Hier liegt ein Vorteil der $^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd$ Reaktion, da Cer und Neodym leichter voneinander abgetrennt werden können als die extrem ähnlichen Elemente Praseodym und Neodym. Auch die spezifische Aktivität könnte ein Vorteil sein, da es auch für den Hersteller des Targetmaterials Praseodymoxid nicht einfach ist, dieses von Neodymoxid zu trennen. Mit Ausnahme der letztgenannten Punkte lässt sich sagen, dass zur Produktion von ^{140}Nd die $^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd$ Reaktion besser geeignet ist.

Tabelle 14: Vergleich der beiden Routen zur Produktion von ^{140}Nd

Produktionsroute	E_{max} [MeV]	σ_{max} [mb]	Energiebereich [MeV]	Integrale Ausbeute [MBq/µA•h]
$^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd$	27	800	$35 \rightarrow 20$	12
$^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd$	20	1300	$30 \rightarrow 15$	210

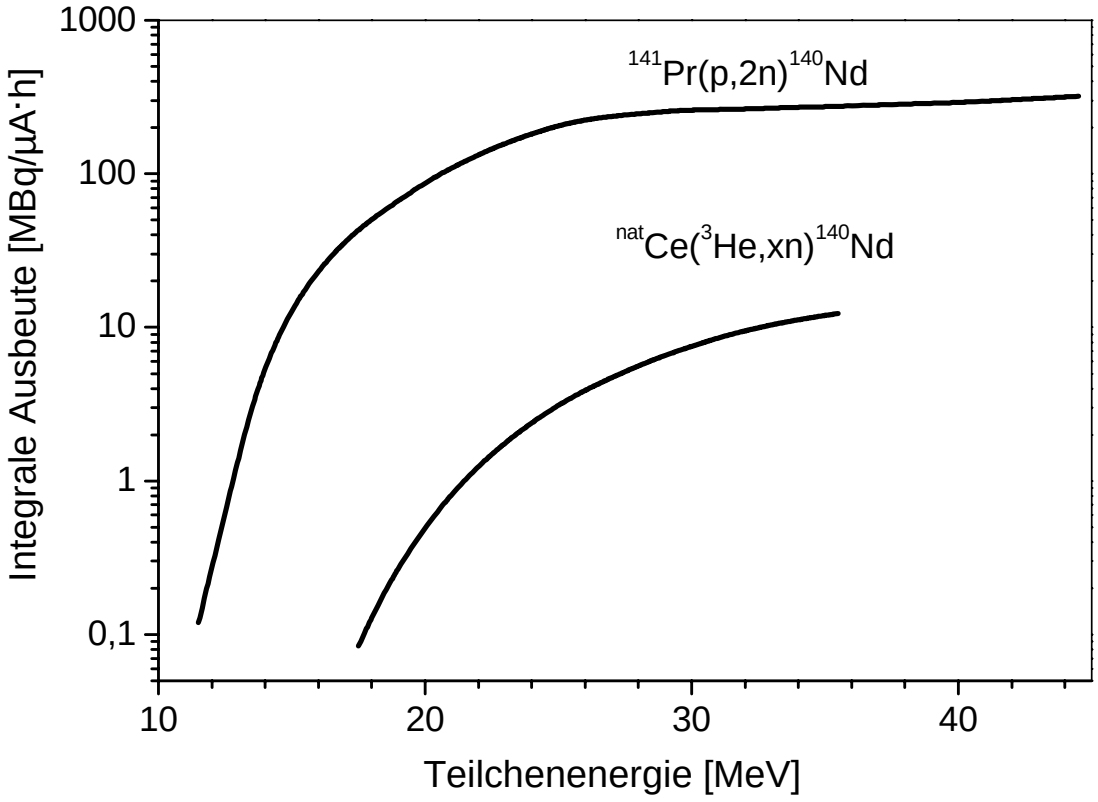

Abbildung 31: Vergleich der integralen Ausbeute von ^{140}Nd aus den $^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd$- und $^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd$-Reaktionen

5.3 Kernreaktionsdaten zur Produktion von ^{192}Ir

5.3.1 Anregungsfunktion der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion

Für die Produktion von ^{192}Ir wurde die ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion untersucht. Es wurde ein angereichertes Target (^{192}Os = 84,5 %, ^{190}Os = 15,4 %) verwendet. Die erhaltenen experimentellen Daten konnten auf 100 % Isotopenanreicherung extrapoliert werden, da nur ^{192}Os zur protoneninduzierten Bildung von ^{192}Ir beitragen kann. Die Ergebnisse dieser Messungen befinden sich in Tabelle 15.

Tabelle 15: Wirkungsquerschnitte der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion

Protonen-energie [MeV]	Wirkungs-querschnitt [mb]
18,9 ± 0,2	19 ± 2
16,8 ± 0,3	21 ± 3
16,0 ± 0,2	28 ± 4
15,0 ± 0,2	32 ± 4
13,8 ± 0,3	38 ± 4
13,2 ± 0,4	43 ± 5
13,1 ± 0,3	41 ± 4
12,5 ± 0,4	47 ± 5
11,6 ± 0,6	48 ± 5
11,4 ± 0,2	50 ± 6
10,7 ± 0,3	58 ± 7
9,8 ± 0,4	62 ± 7
9,1 ± 0,5	67 ± 8
9,1 ± 0,5	68 ± 8
8,6 ± 0,5	41 ± 4
8,6 ± 0,3	36 ± 4
8,3 ± 0,6	28 ± 3
8,2 ± 0,8	24 ± 3
7,3 ± 0,6	8 ± 1
6,4 ± 0,6	3,6 ± 0,4

Abbildung 32 zeigt die gemessenen Daten zusammen mit den Ergebnissen der theoretischen Berechnungen des Rechencodes EMPIRE II (für den Grundzustand und den ersten isomeren Zustand). Diese Reaktion weist eine Reaktionsschwelle von 5 MeV und einen maximalen Wirkungsquerschnitt von 62 mb bei ungefähr 10 MeV auf. Systematiken von Wirkungsquerschnitten anderer (p,n)-Reaktionen lassen in diesem Massenbereich einen höheren Wirkungsquerschnitt erwarten. Der Unterschied ist damit zu erklären, dass der zweite isomere Zustand dieses Nuklids ^{192m2}Ir ($T_{½}$ = 241 a) auf Grund seiner Halbwertszeit und Zerfallseigenschaften nicht gemessen wurde. An den theoretischen Rechnungen, die speziell für diesen isomeren Zustand mit Hilfe des Codes EMPIRE II durchgeführt wurden und ebenso in Abbildung 32 dargestellt sind, ist zu erkennen, das der Wirkungsquerschnitt für die Bildung dieses Zustandes nicht sehr hoch ist. In Abbildung 32 sind außerdem die Ergebnisse der Berechnungen zu dieser Reaktion mit Hilfe des Rechencodes ALICE-IPPE [60] für den gesamten Reaktionskanal aufgezeigt. In diesem Fall ist die Abweichung zwischen Experiment und Theorie relativ groß, insbesondere oberhalb von 14 MeV, wo die Exciton-Modell-rechnung einen höheren Wirkungsquerschnitt voraussagt.

5.3.2 Ausbeuterechnung

Die integrale Ausbeute von ^{192}Ir nach der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion ist in Tabelle 16 aufgeführt und in Abbildung 33 dargestellt. Auch für diese Reaktion wurde die Ausbeute gemäß Abschnitt 3.2 berechnet und als Wirkungsquerschnitte wurde ebenfalls die „Eye guide“ Kurve durch die experimentellen Daten verwendet. Der Energiebereich einer sinnvollen Produktion von ^{192}Ir wurde so gewählt, dass die maximale Ausbeute ohne die Produktion der isotopen Verunreinigung ^{190}Ir ($T_{½}$ = 11,8 d), die nach der ^{192}Os(p,3n)^{190}Ir Reaktion gebildet wird, erreicht wird.

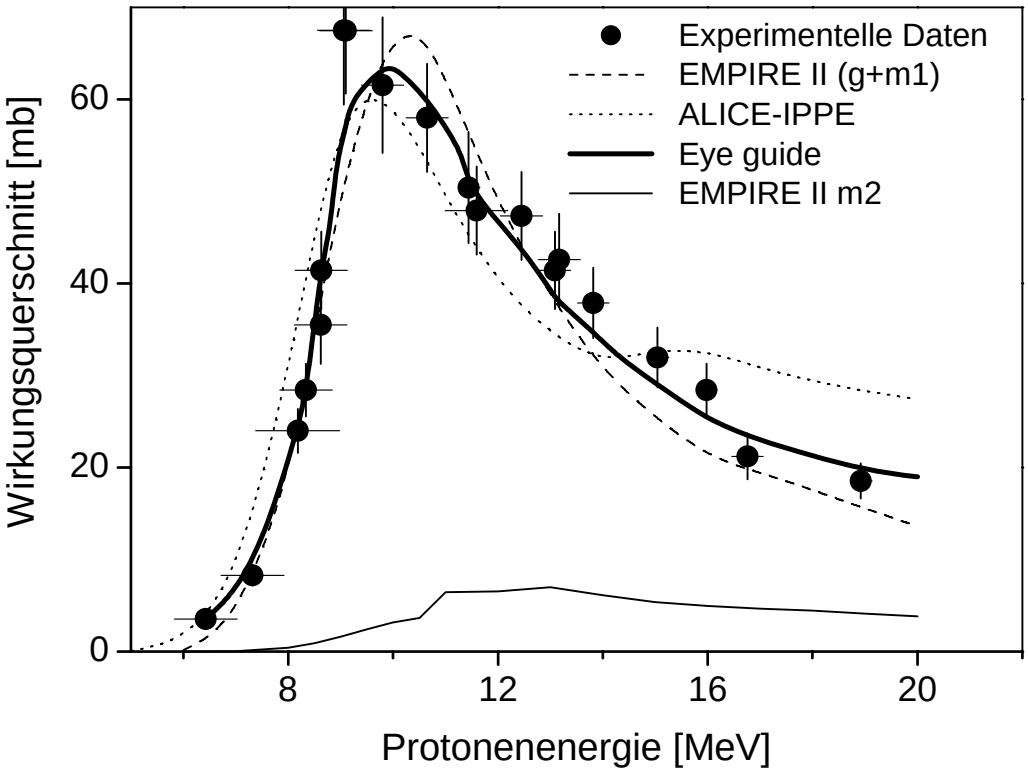

Abbildung 32: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit EMPIRE II und ALICE-IPPE für die $^{192}Os(p,n)^{192}Ir$ Reaktion

Tabelle 16: Integrale Ausbeute der $^{192}Os(p,n)^{192}Ir$ Reaktion

Energie [MeV]	Integrale Ausbeute [MBq/µA•h]
19,5	0,22
18,5	0,21
17,5	0,19
16,5	0,18
15,5	0,16
14,5	0,15
13,5	0,13
12,5	0,11
11,5	0,09
10,5	0,06
9,5	0,04
8,5	0,01

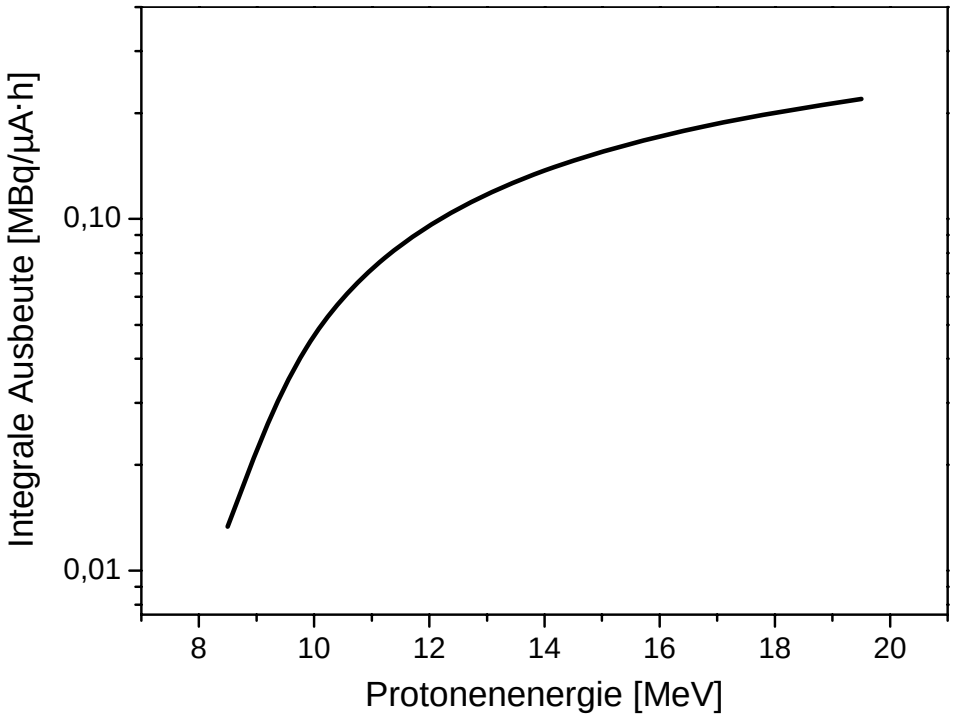

Abbildung 33: Integrale Ausbeute von ^{192}Ir nach der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion

5.3.3 Produktionsmöglichkeit und Vergleich mit der Reaktorproduktion

Beim Vergleich der Reaktorproduktion von ^{192}Ir gemäß der ^{191}Ir(n,γ)^{192}Ir Reaktion und der Produktion von ^{192}Ir nach der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion (siehe dazu auch Tabelle 17) ist festzustellen, dass die Ausbeute der Reaktorproduktion größer ist. Unter den in der Literatur beschriebenen Bedingungen [35] erhält man eine Ausbeute von 12 GBq $^{192m1+g}$Ir und 1,2 kBq der langlebigen Verunreinigung ^{192m2}Ir. Bei der Zyklotronproduktion gemäß der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion lässt sich bei einer Strahlzeit von 30 h und 600 µA im Energiebereich E_p = 16 → 8 MeV eine Ausbeute von 2,8 GBq erzielen. Die Menge der langlebigen Verunreinigung ^{192m2}Ir wurde mit etwa 280 kBq unter den gleichen Bedingungen abgeschätzt. Dazu diente eine Berechnung mit dem Code EMPIRE II. Zugrunde gelegt wurde für beide Reaktionen eine Targetanreicherung von 100 %. Es lässt sich feststellen, dass die Reaktorproduktion nicht nur eine höhere Ausbeute, sondern auch eine höhere Reinheit

gewährleistet. Bei dieser Produktion [35] werden gewöhnlich 10 mg Na_2IrCl_6 bestrahlt. Die spezifische Aktivität solcher Proben beträgt etwa 185 GBq/g Ir. Wird zur Produktion dieses Nuklids ein Kernreaktor mit einem höheren Neutronenfluss eingestzt, so könnten damit Ausbeute und spez. Aktivität erhöht werden. Dies kann bei einem Zyklotron nicht so leicht durchgeführt werden, da ab einem gewissen Teilchenfluss die Wärmeproduktion so hoch ist, dass bei der Bestrahlung das Target zerstört würde. Jedoch könnte die Strahlzeit zur Produktion dieses Nuklids erhöht werden. Am Zyklotron könnte ^{192}Ir aber in „no-carrier-added“ Form erhalten werden, d. h. die spez. Aktivität könnte sehr hoch sein. Ist die spezifische Aktivität nicht so wichtig, so ist die Reaktorproduktion von ^{192}Ir wegen höherer Ausbeute und Reinheit der Zyklotronproduktion gemäß der ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion vorzuziehen.

Tabelle 17: Vergleich der Reaktor- und Zyklotronproduktion von ^{192}Ir

Parameter	Kernreaktor	Zyklotron
Reaktion	^{191}Ir(n,γ)^{192}Ir	^{192}Os(p,n)^{192}Ir
Wirkungsquerschnitt	$\langle\sigma\rangle$ = 954 b	Anregungsfunktion bis 20 MeV σ_{max} = 62 mb
Fluss	$1{,}5 \cdot 10^{13}$ n · cm^{-2} · s^{-1}	$1{,}87 \cdot 10^{15}$ p · s^{-1}
Ausbeute	12 GBq	2,8 GBq
Spezif. Aktivität	> 185 GBq/g Ir	no-carrier-added
Verunreinigung an ^{192m2}Ir	1,2 kBq	280 kBq

5.4 Produktion von ^{195m}Pt, ^{193m}Pt und ^{191}Pt

5.4.1 Kernreaktionsdaten

Zur Produktion der Nuklide ^{195m}Pt, ^{193m}Pt und ^{191}Pt wurden folgende Reaktionen untersucht: ^{192}Os(α,n)^{195m}Pt, ^{192}Os(α,3n)^{193m}Pt, ^{192}Os(^{3}He,2n)^{193m}Pt und ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt. Für die Produktion von isomeren Zuständen, insbesondere der Hochspinisomere ^{195m}Pt und ^{193m}Pt, wird ein hohes Drehmoment als vorteilhaft angesehen. Deswegen wurden die Kernreaktionen mit ^{3}He- und Alphateilchen, die einen hohen Drehimpuls aufweisen, gewählt (siehe Abschnitt 1.9).

Tabelle 18: Wirkungsquerschnitte der ^{192}Os(α,n)^{195m}Pt, ^{192}Os(α,3n)^{193m}Pt und ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktionen

Projektilenergie [MeV]	Wirkungsquerschnitt [mb]		
	^{192}Os(α,n) ^{195m}Pt	^{192}Os(α,3n) ^{193m}Pt	^{192}Os(^{3}He,4n) ^{191}Pt
35,6 ± 0,2			373 ± 63
32,3 ± 0,4			479 ± 81
30,3 ± 0,4			511 ± 87
28,4 ± 0,5			393 ± 67
27,5 ± 0,2	1,5 ± 0,2	197 ± 310	
26,9 ± 0,6			275 ± 47
26,5 ± 0,2	3,3 ± 0,5	129 ± 19	
26,0 ± 0,2	1,4 ± 0,2	43 ± 6	
26,0 ± 0,6			442 ± 75
25,5 ± 0,6			263 ± 45
25,0 ± 0,3	2,8 ± 0,4	23 ± 4	
24,6 ± 0,2			168 ± 29
24,4 ± 0,7			183 ± 31
23,7 ± 0,7			111 ± 19
23,5 ± 0,4	3,3 ± 0,5	7 ± 1	
22,5 ± 0,8			51 ± 9
22,1 ± 0,5	4,4 ± 0,7		
21,3 ± 0,5	2,9 ± 0,4		
20,0 ± 0,6	2,4 ± 0,4		
19,2 ± 0,6	3,7 ± 0,6		
18,1 ± 0,7	2,1 ± 0,3		
17,3 ± 0,8	1,7 ± 0,2		
15,9 ± 0,9	0,6 ± 0,1		

$^{192}Os(\alpha,n)^{195m}Pt$ Reaktion

Zur Messung dieses Nuklids diente die γ-Linie bei 98,9 keV und auch die K_α-Röntgenlinie des Platins bei 66,9 keV. Bis etwa 23 MeV Projektilenergie stimmten die experimentellen Wirkungsquerschnitte, die anhand der beiden Linien gemessen wurden, überein. Bei höheren Energien war eine Abnahme der Intensität der γ-Linie, aber eine Zunahme bei der Röntgenlinie zu erkennen. Diese Ergebnisse stimmen mit der berechneten Energieschwelle für die $^{192}Os(\alpha,3n)^{193m}Pt$ Reaktion überein. Zur Ermittlung des Wirkungsquerschnitts oberhalb 23 MeV wurde daher die Aktivität mit Hilfe der γ-Linie bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 18 aufgelistet und in Abbildung 34 grafisch dargestellt. Man erkennt ein Maximum von ca. 4 mb bei etwa 22 MeV. Literaturdaten sind zu dieser Reaktion nicht bekannt. Ein Vergleich mit den Ergebnissen des Rechencodes ALICE-IPPE ist dargestellt. Zu diesem Rechencode muss jedoch bemerkt werden, dass er, wie in Abschnitt 4.1 erwähnt, nicht geeignet ist, isomere Wirkungsquerschnitte zu berechen. Die Rechenergebnisse zeigen jedoch, dass der Wirkungsquerschnitt nicht nur des isomeren Zustands, sondern auch der gesamten (α,n)-Reaktion relativ klein ist.

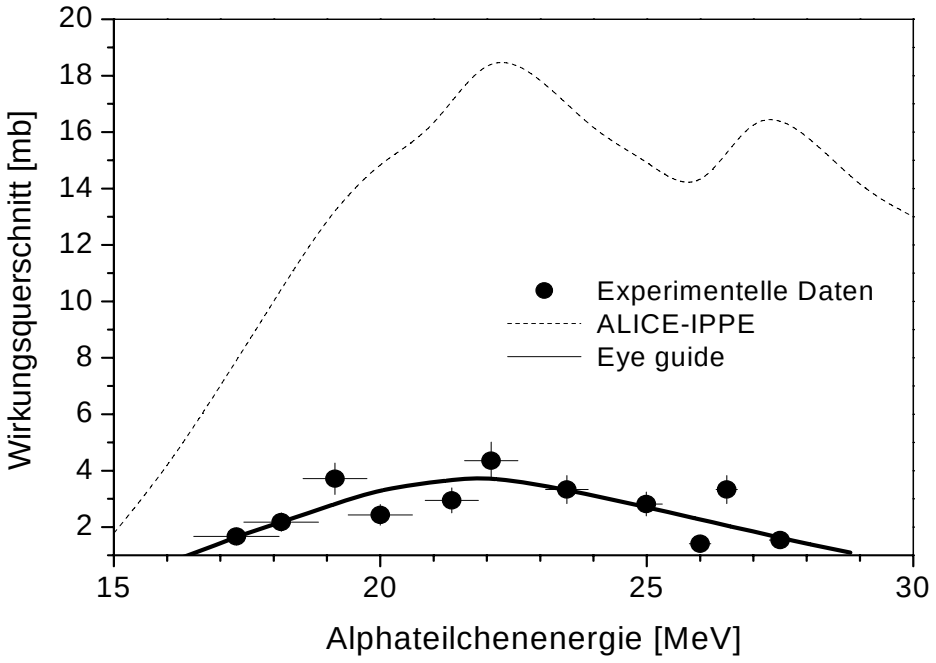

Abbildung 34: Experimentell ermittelte Daten zur $^{192}Os(\alpha,n)^{195m}Pt$ Reaktion

Die Ergebnisse der Rechnung mit ALICE-IPPE beschreiben den gesamten $^{192}Os(\alpha,n)$-Prozess

$^{192}Os(\alpha,3n)^{193m}Pt$ Reaktion

Die Aktivität des Radionuklids ^{193m}Pt konnte nur durch seine Röntgenlinien bestimmt werden. Hierzu wurde anhand der Messung eines Spektrums die Aktivität des Nuklids ^{195m}Pt mittels dessen charakteristischer γ-Linie bestimmt. Diese Aktivität wurde von der Intensität der Röntgenlinie abgezogen und so die Aktivität des ^{193m}Pt bestimmt. Die auf diese Weise erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 18 aufgelistet und in Abbildung 35 grafisch dargestellt. Bei dieser Reaktion erkennt man im untersuchten Energiebereich kein Maximum im Wirkungsquerschnitt. Auch für diese Reaktion standen keine Literaturdaten zur Verfügung. Im Gegensatz zur ^{192}Os(α,n)^{195m}Pt Reaktion stimmen in diesem Fall Berechnung der Wirkungsquerschnitte mit ALICE-IPPE gut mit den experimentellen Daten überein. Es muss jedoch erwähnt werden, dass der untersuchte Energiebereich relativ klein ist. Die Abweichungen werden oft im Bereich des Maximums der Anregungsfunktion beobachtet.

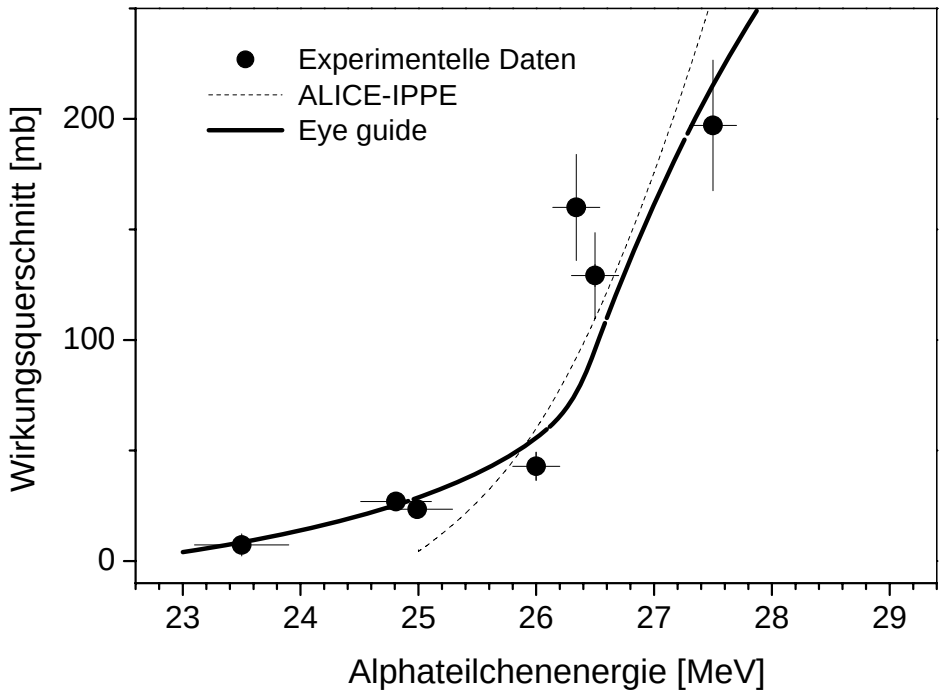

Abbildung 35: Experimentell ermittelte Daten zur ^{192}Os(α,3n)^{193m}Pt Reaktion. Die Ergebnisse der Rechnung mit ALICE-IPPE beschreiben den gesamten ^{192}Os(α,3n)-Prozess

$^{192}Os(^{3}He,2n)^{193m}Pt$ Reaktion

In keiner der bestrahlten Proben konnte ^{193m}Pt nachgewiesen werden. Möglicherweise ist das Projektil so schwach gebunden, dass es vor der Kernreaktion zerstört wird oder der Drehimpuls reicht für die Bildung dieses Nuklids nicht aus.

$^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$ Reaktion

Die Aktivität von ^{191}Pt konnte anhand seiner charakteristischen γ-Linien (siehe Tabelle 4) bestimmt werden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 18 aufgelistet und in Abbildung 36 grafisch dargestellt. Ein Maximum bei etwa 30 MeV in Höhe von etwa 500 mb ist erkennbar. Beim Vergleich mit den Berechnungen nach ALICE-IPPE ist festzustellen, dass die theoretischen Daten in diesem Fall zu hoch liegen, ein Problem, dass anfangs auch bei Protonen vorlag. Die zugrunde liegenden Daten für das Targetnuklid ^{192}Os im Rechencode ALICE-IPPE scheinen somit falsch zu sein. Literaturdaten lagen auch zu dieser Reaktion nicht vor.

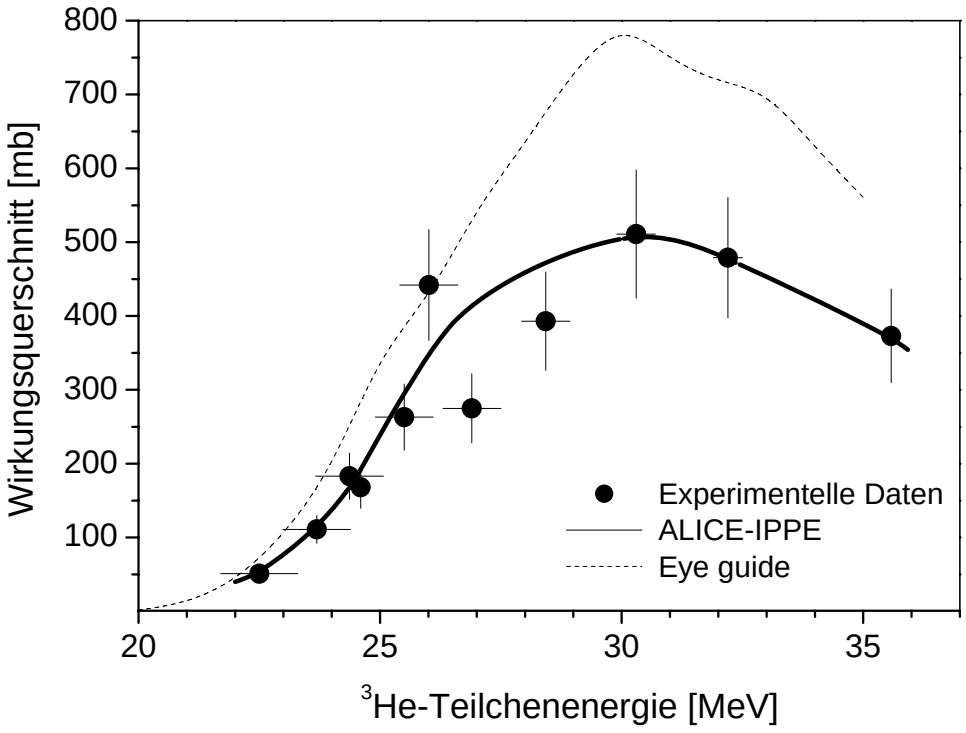

Abbildung 36: Ergebnisse der Experimente und der Rechnungen mit ALICE-IPPE für die $^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$ Reaktion

5.4.2 Ausbeuten der $^{192}Os(\alpha,xn)^{193m,195m}Pt$ Reaktionen

Die integralen Ausbeuten der Platinnuklide ^{193m}Pt und ^{195m}Pt berechnet gemäß Abschnitt 3.2 unter der Annahme eines 100-prozentigen ^{192}Os-Targets sind in Tabelle 19 aufgeführt und in Abbildung 37 dargestellt. Es lässt sich feststellen, dass die integrale Ausbeute der $^{192}Os(\alpha,n)^{195m}Pt$ Reaktion eine Sättigung erreicht, während dies bei der $^{192}Os(\alpha,3n)^{193m}Pt$ Reaktion nicht der Fall ist. Dieser Befund lässt sich dadurch erklären, dass die letztgenannte Reaktion im untersuchten Energiebereich kein Maximum erreicht. Die integrale Ausbeute von ^{193m}Pt beträgt im untersuchten Energiebereich ($E_\alpha = 28 \rightarrow 24$ MeV) 0,25 MBq/µA•h. An der Anregungsfunktion dieser Reaktion (siehe Abbildung 35) lässt sich feststellen, dass diese Ausbeute bei höheren Alphateilchenenergien (etwa 35 MeV) noch deutlich gesteigert werden kann. Die integrale Ausbeute für die Produktion von ^{195m}Pt hängt von dem Energiebereich ab, der gewählt wird. Soll eine Kontamination mit ^{193m}Pt minimiert werden, so bietet sich der Energiebereich $E_\alpha = 24 \rightarrow 18$ MeV an. In diesem Fall lohnt es sich aus Kostengründen nicht, Energien unterhalb von 18 MeV zu verwenden, da mit hochangereichertem Targetmaterial gearbeitet werden muss. Die integrale Ausbeute im oben genannten Energiebereich beträgt 0,013 MBq/µA•h. Die Ausbeute könnte noch auf 0,019 MBq/µA•h erhöht werden, wenn man den Energiebereich $E_\alpha = 28 \rightarrow 18$ MeV zuließe. Da beide Platinnuklide auf die gleiche Weise eingesetzt werden sollen, spricht prinzipiell nichts gegen den Einsatz beider Nuklide in einer Anwendung. Auch ist die Halbwertszeit beider Nuklide vergleichbar. Ein Problem könnte sich aus der Berechnung der Dosimetrie beider Nuklide zusammen ergeben. Die in dieser Arbeit berechnete Ausbeute kann in gewissem Maß mit der Ausbeute verglichen werden, die in [25] aufgeführt ist. Dort wurden 1,1 MBq/µA•h bei Bestrahlung von natürlichem Osmium mit Alphateilchen erhalten. Die höhere Ausbeute, verglichen mit der dieser Arbeit, lässt den Schluss zu, das die Anregungsfunktion dieser Reaktion noch weiter ansteigt und so zu höheren Ausbeuten führt. Außerdem sind die Ausbeuten bei höheren Energien dadurch höher, dass der Energieverlust in Materie bei höheren Energien niediger ist.

Tabelle 19: Integrale Ausbeuten der $^{192}Os(\alpha,n)^{195m}Pt$, $^{192}Os(\alpha,3n)^{193m}Pt$ und $^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$ Reaktionen

Energie	Integrale Ausbeute [MBq/µA•h]		
[MeV]	$^{192}Os(\alpha,n)^{195m}Pt$	$^{192}Os(\alpha,3n)^{193m}Pt$	$^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$
36			7,142
35			6,563
34			5,949
33			5,299
32			4,608
31			3,902
30			3,193
29			2,508
28	0,021	0,252	1,873
27	0,020	0,115	1,301
26	0,018	0,039	0,807
25	0,017	0,017	0,439
24	0,015	0,005	0,223
23	0,012		0,100
22	0,010		0,040
21	0,007		0,006
20	0,005		
19	0,003		
18	0,002		
17	0,001		

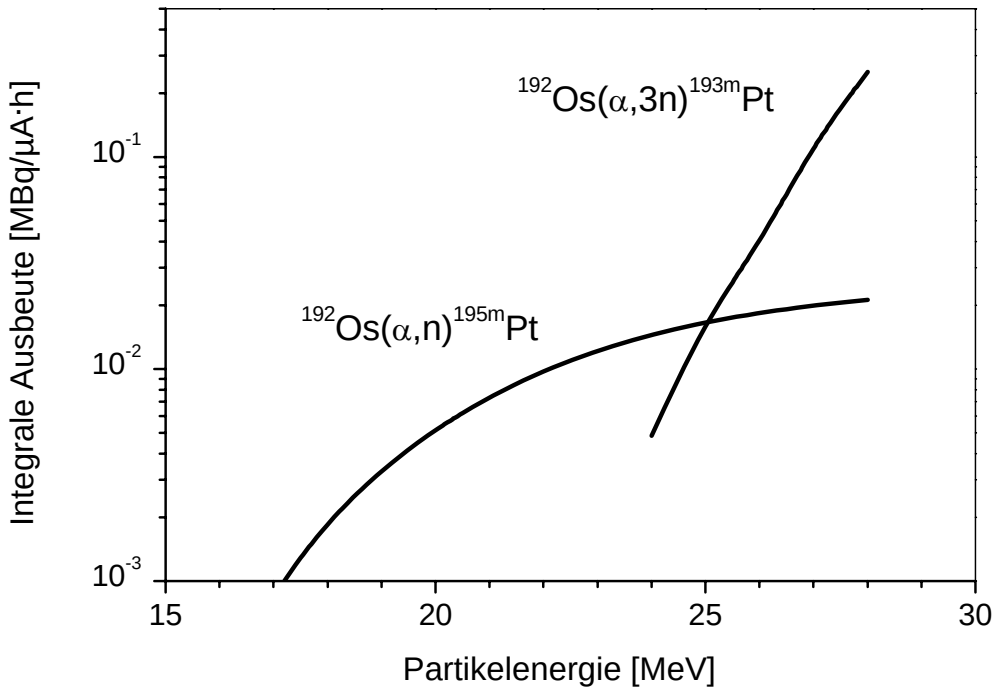

Abbildung 37: Integrale Ausbeute der Platinnuklide ^{193m}Pt und ^{195m}Pt bei Bestrahlung von ^{192}Os mit α-Teilchen

5.4.3 Ausbeute der ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktion

Die integrale Ausbeute der ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktion berechnet gemäß Abschnitt 3.2 unter der Annahme eines 100-prozentigen ^{192}Os-Targets ist in Tabelle 19 aufgeführt und in Abbildung 36 dargestellt. Bei dieser Reaktion ist für die integrale Ausbeute eine Sättigung im untersuchten Energiebereich zu erkennen. Da keine isotopen Verunreinigungen festgestellt werden konnten, könnte der gesamte untersuchte Energiebereich zur Produktion von ^{191}Pt dienen. Da jedoch hochangereichertes Material eingesetzt werden soll, wird der Energiebereich auf $E_{^3He}$ = 36 $\rightarrow$ 25 MeV beschränkt. In diesem Bereich lässt sich eine integrale Ausbeute von ca. 6,7 MBq/µA•h erzielen.

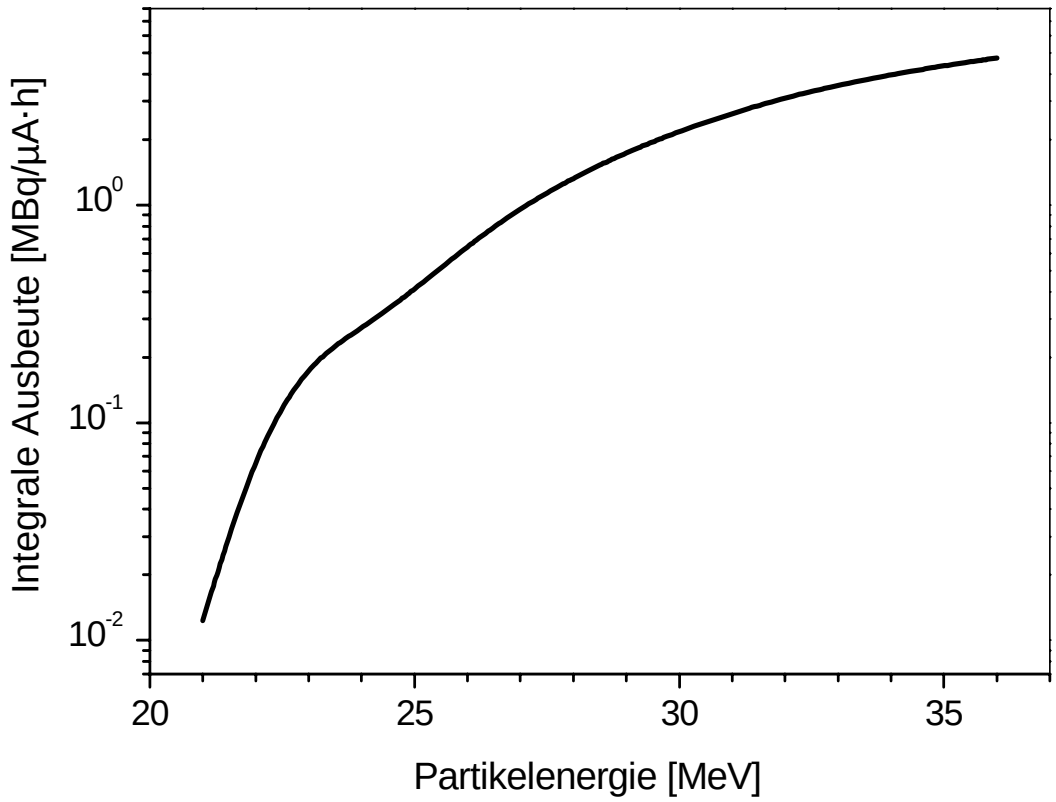

Abbildung 36: Integrale Ausbeute der ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktion

5.4.4 Produktion von ^{193m}Pt und ^{195m}Pt und Qualitätskontrolle des Produkts

Vergleich der experimentellen und theoretisch berechneten integralen Ausbeuten

Die experimentellen Ausbeuten, erzielt unter realen Produktionsbedingungen, sind in den Tabellen 20 und 21 dargestellt. Sie wurden mit den theoretisch berechneten Ausbeuten verglichen. Dabei sind die experimentellen Ergebnisse mit der chemischen Ausbeute korrigiert, die theoretischen Ausbeuten sind mit dem Anreicherungsgrad des ^{192}Os und dem Ergebnis der Strahlprofilmessung korrigiert.

Tabelle 20: Vergleich zwischen theoretisch berechneter und experimentell erhaltener Ausbeute an ^{195m}Pt

Energiebereich E_α [MeV]	Strahlstrom [µA]	Strahlzeit [h]	Theoretische Ausbeute [MBq]	Experimentelle Ausbeute [MBq]
28 → 25,3	9,9	5,9	0,16	0,1
28 → 25,5	19,1	6,6	0,35	0,2
28 → 26,7	21,1	6,2	0,28	0,07
28 → 27,0	21,5	5,4	0,3	0,2
28 → 22,3	19,3	4,9	0,37	0,3
25,4 → 18,2	14,8	11,2	1,3	0,9

Tabelle 21: Vergleich zwischen theoretisch berechneter und experimentell erhaltener Ausbeute an ^{193m}Pt

Energiebereich E_α [MeV]	Strahlstrom [µA]	Strahlzeit [h]	Theoretische Ausbeute [MBq]	Experimentelle Ausbeute [MBq]
28 → 25,3	9,9	5,9	5,39	2,1
28 → 25,5	19,1	6,6	11,6	4,8
28 → 26,7	21,1	6,2	4,8	1,7
28 → 27,0	21,5	5,4	11,0	2,6
28 → 22,3	19,3	4,9	9,7	8,7
25,4 → 18,2	14,8	11,2	0,9	0,5

Im Allgemeinen ist die Übereinstimmung zwischen den theoretisch berechneten und den experimentell erhaltenen Ausbeuten zufriedenstellend; die experimentellen Werte betragen im Durchschnitt 40 – 70 % der theoretischen Ausbeuten. Abweichungen können dadurch hervorgerufen werden, dass die Übertragbarkeit der theoretischen Daten in den Produktionsmaßstab nicht 100-prozentig gegeben ist. Durch Strahlenschäden im Target und durch thermische Effekte bei hohen Strahlströmen kann es außerdem zu nicht berücksichtigten Verminderungen der Ausbeute kommen.

Qualitätskontrolle

Die nach Abschnitt 3.3.4 erhaltenen Ergebnisse für die Qualitätskontrolle des abgetrennten Produkts lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- Die radionuklidische Reinheit war stets gut, d. h. es wurden keine oder nur ganz wenige Verunreinigungen gefunden, von ^{56,58}Co oder ^{65}Zn in geringen Mengen von insgesamt etwa 0,01 % nachgewiesen werden.
- Unter den Trennbedingungen liegt das Radioplatin als anionischer Komplex vor; dies stimmt mit der Literatur überein [cf. 26].
- Die chemische Reinheit, bestimmt mittels ICP-MS ergab, dass alle Verunreinigungen im Bereich weniger µg/L lagen.
- Spezifische Aktivitäten von ca. 150 GBq/g Pt für ^{195m}Pt und ca. 3 TBq/g Pt für ^{193m}Pt konnten erreicht werden.

5.4.5 Vergleich zwischen Reaktor- und Zyklotronproduktion von ^{193m}Pt und ^{195m}Pt

Eine Übersicht über die Reaktorproduktion von ^{195m}Pt gemäß [36] und über die Zyklotronproduktion basierend auf den Daten dieser Arbeit ist in Tabelle 22 gegeben. Nach der gleichen Methode könnte ^{193m}Pt produziert werden. Zu beachten ist hierbei, dass ^{192}Pt im Vergleich zu ^{194}Pt weniger häufig in der Natur auftritt und daher dieses Target viel teurer wäre. Daher ist diese Form der Produktion bisher nicht durchgeführt worden und diese Möglichkeit besteht nur theoretisch.

Wie bei der Zyklotronproduktion von ^{192}Ir ist die Ausbeute von ^{195m}Pt niedriger als bei der

Reaktorausbeute. Es kann nur etwa ein Zehntel der Reaktorausbeute erlangt werden. Die spezifische Aktivität, die für die interne Radiotherapie sehr wichtig ist, ist jedoch in jedem Fall bei der Zyklotronproduktion höher. Auch liegen die Targetkosten aufgrund der höheren Häufigkeit von ^{192}Os im natürlichen Osmium im Vergleich zu ^{194}Pt im natürlichen Platin niedriger. Für die Endoradiotherapie scheint die Zyklotronproduktion eine geeignete Alternative zu sein. Die gleichen Verhältnisse werden für die theoretische Produktion von ^{193m}Pt erzielt, nur dass in diesem Fall das Targetmaterial ^{192}Pt viel teurer wäre. Eine weitere Möglichkeit zur Produktion von ^{195m}Pt in hohen spez. Aktivitäten ist die Aktivierung von ^{193}Ir im Hochflussreaktor nach folgender Reaktion: ^{193}Ir(n,γ)^{194}Ir(n,γ)^{195}Ir $\rightarrow$ ^{195m}Pt. Diese Methode, die noch nicht angewendet oder genauer untersucht wurde, sondern nur als mögliche Alternative vorgeschlagen wurde, verbindet den Vorteil der Reaktorproduktion mit der Möglichkeit hohe spez. Aktivitäten zu erreichen, da nach dem zweifachen Neutroneneinfang das gebildete ^{195}Ir zu ^{195m}Pt zerfällt und somit vom Targetmaterial abgetrennt werden kann. Für die Produktion von Nukliden durch zweifachen Neutroneneinfang bedarf es jedoch eines Hochflussreaktors, da die Wahrscheinlichkeit des zweiten Neutroneneinfangs relativ niedrig ist. Die Wirkungsquerschnitte für die beiden Neutroneneinfangreaktionen sind mit 105 und 1500 barn höher als die Wirkungsquerschnitte für die beiden Neutroneneinfänge zur Produktion von ^{188}W, das an Hochflussreaktoren produziert werden kann. Die Wahrscheinlichkeit für die Produktion von ^{195}Ir sollte somit ausreichend sein. Außerdem zerfällt dieses Nuklid zu 95 % zum isomeren Zustand ^{195m}Pt. Diese Methode könnte sich somit als die beste Methode zur Produktion von ^{195m}Pt in hohen spezifischen Aktivitäten herausstellen. Weitere Tests, besonders über chemische Trennung und praktische Ausbeuten, bleiben jedoch abzuwarten. Zur Produktion von ^{193m}Pt sind in [25] Ausbeuten der ^{nat}Ir(d,xn)^{193m}Pt Reaktion mit 5,8 MBq/μA•h im Energiebereich $E_d = 19 \rightarrow 14$ MeV bzw. mit 9,5 MBq/μA•h im Energiebereich $E_d = 19 \rightarrow 9$ MeV angegeben. Diese Reaktion weist somit eine höhere Ausbeute als die Reaktion an angereichertem ^{192}Os auf. Da in diesem Fall eine hohe spezifische Aktivität zu erzielen sein sollte, als bei der Reaktorproduktion, weist diese Reaktion gegenüber der ^{192}Os(α,3n)^{193m}Pt, zumindest im untersuchten Energiebereich, den Vorteil höherer Ausbeute und hoher spezifischer Aktivität auf, was sie geeigneter zur Produktion von ^{193m}Pt erscheinen lässt.

Tabelle 22: Vergleich der Reaktor- und Zyklotronproduktion von ^{195m}Pt

Parameter	Kernreaktor	Zyklotron
Reaktion	^{194}Pt (n,γ)^{195m}Pt	^{192}Os(α,n)^{195m}Pt
Wirkungsquerschnitt	$<\sigma>$ = 0,1 b	σ_{max} = 3,7 mb
Targetanreicherung	95 %	84,5 %
Fluss	$8{,}15 \cdot 10^{13}$ n · cm^{-2} · s^{-1}	$9{,}36 \cdot 10^{14}$ α · s^{-1}
Ausbeute	1 GBq	0,09 GBq
Spezif. Aktivität	11 GBq/g Pt	150 GBq/g Pt

5.4.6 Vergleich von Produktionsmethoden des Radionuklids ^{191}Pt

Auch für das Radionuklid ^{191}Pt gibt es andere Produktionsmethoden. In der Literatur sind Untersuchungen zur ^{197}Au(p,spall)^{191}Pt Reaktion [62], der ^{nat}Ir(p,xn)^{191}Pt Reaktion [63] und ^{nat}Os(α,xn)^{191}Pt Reaktion [64] beschrieben worden (im letzten Fall sind differentielle Ausbeuten angegeben). In Tabelle 23 ist ein Vergleich der Produktion von ^{191}Pt gemäß der oben genannten Produktionsmethoden mit der in dieser Arbeit untersuchten ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktion gegeben. Im Vergleich mit den protoneninduzierten Reaktionen [62,63] lässt sich ablesen, dass die ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktion zwar den größten Wirkungsquerschnitt dieser drei Reaktionen hat, aber auch die niedrigste Ausbeute. Dies liegt zum einen daran, dass ^{3}He-Teilchen in Materie viel schneller ihre Energie verlieren als Protonen und somit bei den anderen Reaktionen die Zahl der bestrahlten Teilchen höher ist. Zum anderen ist der Energiebereich der protoneninduzierten Reaktionen höher, so dass wiederum die Zahl der bestrahlten Teilchen im Vergleich zur ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktion höher ist. Vom Standpunkt des Energiebereichs ist somit die ^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt Reaktion am günstigsten, da sie mit niedrigerer Teilchenenergie auskommt. Die Ausbeute der Spallation an Gold ist zwar bei weitem die höchste, jedoch werden für diese Art der Produktion sehr hohe Protonenenergien benötigt. Zudem ist die Aufarbeitung und die Abtrennung des (der) gewünschten Produktes (Produkte) durch die Vielzahl an Radionukliden größer. Außerdem ist

die isotope Verunreinigung bei dieser Art der Reaktion höher. Vergleicht man die Ausbeute der $^{nat}Os(\alpha,xn)^{191}Pt$ Reaktion mit der $^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$ Reaktion, so sind die Ausbeuten der beiden Reaktionen in der gleichen Größenordnung; die Ausbeute der $^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$ Reaktion ist etwas höher. Zudem ist die radionuklidische Reinheit bei dieser Reaktion durch die Verwendung angereicherten Materials höher. Vergleicht man die Ausbeuten der letztgenannten Reaktionen mit der $^{nat}Ir(p,xn)^{191}Pt$ Reaktion, so scheint diese besser zur Produktion von ^{191}Pt geeignet zu sein, sofern ein Zyklotron geeigneter Energie zur Verfügung steht.

Neben diesen theoretisch berechneten Ausbeuten sind experimentell erhaltene Ausbeuten für die Produktion von ^{191}Pt in der Literatur verfügbar [25,65,66]. So wird in [25] die Ausbeute von ^{191}Pt durch deuteroneninduzierte Reaktionen an natürlichem Iridium zu 5,0 MBq/µA•h im Energiebereich $E_d = 19 \rightarrow 14$ MeV bzw. zu 9,0 MBq/µA•h im Energiebereich $E_d = 19 \rightarrow 9$ MeV angegeben. Die in der Literatur genannten Ausbeuten von ^{191}Pt durch Bestrahlung mit Protonen an natürlichem Iridium sind mit 22,3 MBq/µA•h bei 32 MeV [25, berechnet nach 65] bzw. 14 MBq/µA•h bei 30 MeV [25, berechnet nach 66] niedriger als die nach [63] berechneten, jedoch handelt es sich um Ausbeuten nach der Trennung, was den Unterschied erklären kann. Auch die genannten praktischen Ausbeuten sind höher als die theoretisch berechneten Ausbeuten der $^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$ Reaktion. Diese Reaktionen sind somit besser geeignet, ^{191}Pt zu produzieren, da hier auch die radionuklidische Reinheit schon erlangt wurde.

Tabelle 23: Vergleich von Zyklotronproduktionsmethoden für das Nuklid ^{191}Pt

Reaktionen	$^{197}Au(p,spall)^{191}Pt$	$^{nat}Ir(p,xn)^{191}Pt$	$^{nat}Os(\alpha,xn)^{191}Pt$	$^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$
Wirkungsquerschnitt	σ_{max} = 390 mb	σ_{max} = 454 mb	nicht angegeben	σ_{max} = 500 mb
Targetanreicherung	^{nat}Au	^{nat}Ir	^{nat}Os	^{192}Os (100%)
Energiebereich	$E_p = 180 \rightarrow 80$ MeV	$E_p = 45 \rightarrow 18$ MeV	$E_\alpha = 38 \rightarrow 18$ MeV	$E_{^3He} = 36 \rightarrow 25$ MeV
Ausbeute	1003 MBq/µA•h	141 MBq/µA•h	3,5 MBq/µA•h	6,7 MBq/µA•h

6 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden neue Produktionsrouten für die therapeutisch relevanten Radionuklide ^{140}Nd, ^{192}Ir, ^{191}Pt, ^{193m}Pt und ^{195m}Pt untersucht. Zur Produktion von ^{140}Nd wurden die Kernreaktionsdaten der ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd Reaktion und der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd Reaktion bestimmt und zur Bildung von ^{192}Ir wurde die ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion systematisch untersucht. Die Produktion der genannten Platinnuklide wurde durch α- und ^{3}He-teilcheninduzierte Reaktionen an Osmium untersucht.

Die Messung der Kernreaktionsdaten erfolgte mittels Folienstapeltechnik. Die Targets wurden durch Sedimentation der Oxide von Cer und Praseodym bzw. durch elektrolytische Abscheidung von Osmium präpariert. Osmium wurde in isotopenangereicherter Form (84,5 % angereichertes ^{192}Os) eingesetzt. Die Bestrahlungen erfolgten an zwei Zyklotronen. Am CV 28 konnten Primärenergien von 20 MeV für Protonen, 36 MeV für ^{3}He-Teilchen und 28 MeV für Alphateilchen erreicht werden. Am Injektor des COSY standen 45 MeV Protonen zur Verfügung. Zur Bestimmung des Teilchenflusses dienten Monitorreaktionen und die Energiedegradierung innerhalb des Stapels wurde mit Hilfe des Programmes „STACK“ berechnet, dass auf dem Formalismus von Bethe und Bloch basiert. Die Aktivitäten der Produkte wurden mit Ausnahme der Radionuklide ^{195m}Pt und ^{195m}Pt, die nach chemischer Abtrennung röntgenspektrometrisch gemessen wurden, γ-spektrometrisch bestimmt. Die Röntgenspektrometrie ist dabei diffiziler als die γ-Spektrometrie und erfordert besonders in der Probenpräparation (dünne Proben erforderlich) höheren Aufwand.

Zusätzlich zu den experimentellen Messungen wurden auch theoretische Rechnungen unter Anwendung der Programme ALICE-IPPE und EMPIRE II durchgeführt, um einerseits die gemessenen Daten zu validieren und andererseits einige Aussagen über die Reaktionsmechanismen zu erlauben.

Im Zusammenhang mit der Produktion von ^{140}Nd wurden neben den oben genannten ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd und ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd Reaktionen weitere Kernreaktionen untersucht, die als Nebenreaktionen auftraten, d. h. die zur Bildung von ^{141}Nd, ^{139}Nd und ^{139}Ce führten. Für alle Reaktionen wurden die experimentell ermittelten Daten mit Literaturdaten, sofern diese

vorhanden sind, verglichen. Bei den ^{3}He-teilcheninduzierten Reaktionen am Targetmaterial Cer handelt es sich um erste systematische Untersuchungen dieser Reaktionen. Auch die Kernmodellrechnungen mit dem Code ALICE-IPPE sind zum ersten Mal für solche Reaktionen durchgeführt worden. Es ist ein gewisser Unterschied zwischen den experimentellen und den theoretischen Ergebnissen erkennbar. Die Kernmodellrechnungen überschätzen die Wirkungsquerschnitte in diesen Fällen. Eine Erklärung dafür könnte die Struktur des ^{3}He-Teilchens sein, das eine höhere Energie des Kerns von ca. 15 MeV besitzt und dadurch vor der Kernreaktion schon Nukleonen, die in diesem Kern nur schwach gebunden sind, aus diesem Verband durch Wechselwirkung mit dem Kern gelöst werden können. Dieser Umstand wird durch die ALICE-IPPE-Rechnungen nur unzureichend berücksichtigt. Bei den protoneninduzierten Reaktionen am Targetmaterial Praseodym konnte allgemein eine gute Übereinstimmung mit den Literaturdaten und den Kernmodellrechnungen erzielt werden. Punktuelle Unterschiede lassen auf Schwächen der Kernmodellrechnungen schließen. Besonders die Daten der ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd Reaktion sind nun systematisch gut erfasst und ausreichend, um als verlässlich zur Produktion von ^{140}Nd zu dienen. Ein Vergleich der beiden Reaktionen im Hinblick auf die Produktion von ^{140}Nd ergab, dass die ^{141}Pr(p,2n)^{140}Nd Reaktion mit einer Ausbeute von 210 MBq/µA•h im Energiebereich $E_p = 30 \rightarrow 15$ MeV der ^{nat}Ce(^{3}He,xn)^{140}Nd Reaktion mit einer Ausbeute von 12 MBq/µA•h im Energiebereich $E_{^3He} = 36 \rightarrow 25$ MeV überlegen ist und somit die bessere Reaktion zur Produktion von ^{140}Nd darstellt.

Die ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion zur Produktion von ^{192}Ir wurde erstmals systematisch untersucht und mit den Ergebnissen der Rechnungen der Codes ALICE-IPPE und EMPIRE II verglichen. Dabei wurde eine höhere Übereinstimmung mit den Ergebnissen von EMPIRE II als mit ALICE-IPPE festgestellt. Beide Modelle zeigten jedoch eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Die gewonnenen Daten aus den Experimenten und den Modellrechnungen dienten auch zu einem Vergleich mit der Routineproduktion von ^{192}Ir am Reaktor. Es lies sich feststellen, dass die ^{192}Os(p,n)^{192}Ir Reaktion mit einer Ausbeute von 0,16 MBq/µA•h im Energiebereich $E_p = 16 \rightarrow 8$ MeV nur bezüglich der spezifischen Aktivität überlegen ist, welche für ^{192}Ir als Nuklid der Brachytherapie keine große Rolle spielt. In den anderen Punkten (Ausbeute, Reinheit und Targetkosten) erwies sich die Reaktorproduktion als die bessere Methode.

Im Hinblick auf die Produktion von Platinnukliden wurden die $^{192}Os(\alpha,n)^{195m}Pt$, $^{192}Os(\alpha,3n)^{193m}Pt$ und $^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$ Reaktionen in dieser Arbeit erstmals systematisch untersucht. Auch hier erfolgte ein Vergleich mit den Ergebnissen von Berechnungen des Rechencodes ALICE-IPPE. Dieser erwies sich jedoch als ungeeignet zur Wiedergabe dieser Reaktionen, da es sich bei ^{193m}Pt und ^{195m}Pt um die Bildung von Isomeren handelt. Die theoretische Ausbeuten an ^{195m}Pt gebildet bei der $^{192}Os(\alpha,n)^{195m}Pt$ Reaktion betragen 0,013 MBq/µA•h im Energiebereich $E_\alpha = 24 \rightarrow 18$ MeV ohne Bildung von ^{193m}Pt bzw. von 0,019 MBq/µA•h im Energiebereich $E_\alpha = 28 \rightarrow 18$ MeV bei gleichzeitiger Bildung von ^{193m}Pt. Für die Ausbeute an ^{193m}Pt, gebildet bei der $^{192}Os(\alpha,3n)^{193m}Pt$ Reaktion, wurden theoretische Ausbeuten von 0,25 MBq/µA•h im Energiebereich $E_\alpha = 28 \rightarrow 24$ MeV berechnet. Diese Ergebnisse wurden mit der Reaktorproduktion dieser Nuklide verglichen. Im Gegensatz zur Produktion von ^{192}Ir kann die Zyklotronproduktion dieser Platinisotope durchaus mit der Reaktorproduktion mithalten, da sie zwar eine Größenordnung niedrigere Ausbeuten, jedoch eine höhere spezifische Aktivität und niedrigere Targetkosten aufweist.

Die mit 6,7 MBq/µA•h im Energiebereich $E_{^3He} = 36 \rightarrow 25$ MeV berechnete theoretische Ausbeute an ^{191}Pt gebildet nach der $^{192}Os(^{3}He,4n)^{191}Pt$ Reaktion wurde mit den Ausbeuten anderer ^{191}Pt-produzierender Reaktionen verglichen. Besonders die protoneninduzierten Reaktionen weisen Ausbeuten auf, die um mehr eine Größenordnung höher sind.

Neben den Kernreaktionsstudien wurde im Falle der Platinnuklide eine praktische Methode zu ihrer Produktion in größerem Maßstab entwickelt. Mit Hilfe eines modifizierten Targets konnten Bestrahlungen mit hohen Teilchenströmen bis ca. 20 µA durchgeführt werden. Die Energiedichte betrug dabei ca. 60 W/cm^2. Die anschließende Abtrennung erfolgte mit Hilfe von Kationenaustauschchromatographie. Die Platinnuklide konnten in hohen radionuklidischen Reinheiten (> 99,9 %) bei ca. 50 % radiochemischer Ausbeute gewonnen werden. Gesamtausbeuten von 0,9 MBq ^{195m}Pt bei einer spezifischen Aktivität von ca. 150 GBq/g Pt und 8,7 MBq ^{193m}Pt mit ca. 3 TBq/g Pt konnten erzielt werden. Die theoretischen Ausbeuten stimmten mit den praktisch erhaltenen Ausbeuten im Rahmen der Übertragbarkeit dieser Ergebnisse überein.

7 Anhang

7.1 Verwendete Standardpräparate

Tabelle 24. Verwendete Standardpräparate

Nuklid	Bezeichnung	Anfangs-aktivität [Bq]	Bezugsdatum	γ-Energie [keV]	Intensität [%]
^{137}Cs	Amersham 7S256	38258	01.03.81	661,72	85,1
^{241}Am	Amersham 7Q220	48322	01.03.81	59,54	35,9
^{133}Ba	Amersham 7R215	46324	01.03.81	276,40	7,2
				302,85	18,3
				356,02	62,0
				383,85	8,9
^{152}Eu	PTB 371-83	356000	01.01.87	123,37	28,4
				244,70	7,5
				344,28	26,6
				778,90	4,2
				867,39	13,0
				964,39	9,9
				1085,91	14,5
				1112,12	13,6
				1408,01	20,8
^{22}Na	Amersham 1X224	432900	01.02.79	511	181
				1274,5	99,9
^{226}Ra	PTB 404-84	137700	01.10.87	187,62	7,5
				241,98	7,5
				295,21	18,5
				351,92	35,8
				609,31	44,8
				768,36	4,8
				1120,28	5,9
				1238,11	5,9
				1377,67	3,9
				1407,98	3,9
				1764,49	15,4

7.2 Verwendete Chemikalien

Tabelle 25: Übersicht über die verwendeten Chemikalien

Chemikalie	Eigenschaften	Hersteller
Kupferfolie	0,025 mm, 99,9 %	Goodfellow
	0,01 mm, 99,9 %	Goodfellow
Titanfolie	0,025 mm, 99,6+ %	Goodfellow
	0,0125 mm, 99,6+ %	Goodfellow
Nickelfolie	0,025 mm, 99,9 %	Goodfellow
	1 mm, 99,99 %	Goodfellow
Eisenfolie	0,025 mm, 99,5 %	Goodfellow
Aluminiumfolie	0,01 mm, 99,0 %	Goodfellow
	0,1 mm, 99 %	Goodfellow
	0,2 mm, 99 %	Goodfellow
Zinnpulver	99,9 %	Merck
Cer(IV)oxid	99,999 %	Koch-Light-Lab
Praseodym(III)oxid	99,999 %	Koch-Light-Lab
Salzsäure	>37 %, p.a.	Merck
Salpetersäure	>37 %, selectipur	Merck
Wasser	p.a.	Merck
Wasserstoffperoxid	30, 35 %, medizinisch reinst	Merck
Diisopropylether	p.a.	Merck
Diethylether	p.a.	Merck
Dowex 50 WX 8	p.a., 100 –200 mesh	Merck

8 Literatur

[1] Firestone, R. B., Tables of Isotopes, *CDROM-Edition Version 1.0, Wiley-Interscience* (1996).

[2] Bohr, N., Neutron capture and nuclear constitution, *Nature* **137**, 344 (1936).

[3] Weißkopf, V., Ewing, D. H., On the yield of nuclear reactions with heavy elements, *Phys. Rev.* **57**, 472 (1940).

[4] Lieser, K. H., Einführung in die Kernchemie, *VCH Weinheim*, 3. Auflage (1991).

[5] Bethe, H., Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie, *Ann. Phys.* **5**, 325 (1930).

[6] Bloch, F., Zur Bremsung rasch bewegter Teilchen beim Durchgang durch Materie, *Ann. Phys.* **16**, 285 (1933).

[7] Williamson, C. F., Boujot, J. P., Picard, J., Tables of range and stopping power of chemical elements for charged particles of energies from 0.5 to 500 MeV, *Rapport CEA- R 3042* (1966).

[8] Qaim, S. M., Nuclear data relevant to the cyclotron production of short-lived medical radioisotopes, *Radiochim. Acta* **30**, 147 (1982).

[9] Tárkányi, T. F., Gul, K., Hermanne, A., Mustafa, M. G., Nortier, F. M., Qaim, S. M., Scholten, B., Shubin, Yu. S., Takács, S., Zhuang, Y., "Beam monitor reactions", in: Charged-Particle Cross Section Database for Medical Radioisotope Production, IAEA-TECDOC-1211, 63 - 144 (2001).

[10] Piel, H., Qaim, S. M., Stöcklin, G., Excitation functions of (p,xn)-reactions on ^{nat}Ni and highly enriched ^{62}Ni: possibility of production of medically important radioisotope ^{62}Cu at a small cyclotron. *Radiochim. Acta* **57**, 1 (1992).

[11] Qaim, S. M., Radiochemical studies of complex particle emission in low and intermediate energy reactions. *Radiochim. Acta* **70/71**, 163 (1995).

[12] Skarnemark, G., Solvent extraction and ion exchange in radiochemistry, in: Nuclear Chemistry 5, Instrumentation, Separation techniques, Environmental issues, Vértes, A., Nagy, S., Klencsár, Z.(eds.), *Kluwer Academic Publishers*, Dordrecht, Niederlande (2003).

[13] Wambersie, A., Battermann, J. J., Dose specification and reporting: the ICRU recommendations, in: Principles and practice of brachytherapy, Joslin, C. A. F., Flynn, A., Hall, E. J. (Eds), ARNOLD, 91 -102 (2001).

[14] Stöcklin, G., Qaim, S. M., Rösch, F., The impact of radioactivity on medicine. *Radiochim. Acta* **70/71**, 249 (1995).

[15] Volkert, W. A., Goeckler, W. F., Erhardt, G. J., Ketering, A. R., Therapeutic radionuclides; production and decay property considerations. *J. Nucl. Med.* **32**, 174, (1991).

[16] Hoefnagel, C. A., Radionuclide therapy revisited. *Eur. J. Nucl. Med.* **18**, 408 (1991).

[17] Lewington, V. J., Targeted radionuclide therapy for bone metastases. *Eur. J. Nucl. Med.* **20**, 66 (1993).

[18] Knapp, Jr., F. F., Mirzadeh, S., The continuing important role of radionuclidic generator systems for nuclear medicine. *Eur. J. Nucl. Med.* **21**, 1151 (1994).

[19] Atkins, H. L., Overview of nuclides for bone pain palliation. *Appl. Radiat. Isot.* **49**, 277 (1998).

[20] Qaim, S. M., Therapeutic radionuclides and nuclear data. *Radiochim. Acta* **89**, 297 (2001).

[21] Rösch, F., Brockmann, J., Lebedev, N.A., Qaim, S.M., Production and radiochemical separation of the Auger electron emitter ^{140}Nd, *Acta Oncol.* **39**, 727 (2000).

[22] Mariani, G., Bodei, L., Adelstein, S. J., and Kassis, A. I., Emerging roles for radiometabolic therapy of tumors based on auger electron emission. *J. Nucl. Med.* **41**, 1519 (2000).

[23] Schaeken, B., Vanneste, F., Bouiller, A., Hoornaert, M. T., Vandenbrooeck, S., Hermans, J., Piron, A., ^{192}Ir brachytherapy sources in Belgian hospitals. *Nucl. Instr. and Meth.* **A312,** 251 (1992).

[24] Lundquist, H., Production and utilization of special radioisotopes from high-energy accelerators, Report F1-TM-26940 of a technical meeting held in Vienna, 2 – 5 May 2005, Vienna, Austria (2005).

[25] Tinker, N. D., Zweit, J, Sharma, H. L., Downey, S., McAuliffe, C. A., Production of no-carrier added ^{191}Pt, a radiolabel for the synthesis and biological investigation of platinum anti-tumor compounds. *Radiochim. Acta* **54**, 29 (1990).

[26] Bonardi, M., Birattari, C., Gallorini, M., Groppi, F., Arginelli, D., Gini, L., Cyclotoron production, radiochemical separation and quality control of platinum radiotracers for toxicological studies, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **236**, 159 (1998).

[27] Kotz, J. C., Treichel P., J. Chemistry and Chemical Reactivity, 4th ed., *Saunders College Publishing: Philadelphia*, (1999).

[28] Rosenberg, B., In: Nucleic Acid-Metal Ion Interactions, T. G. Spiro, *Ed. John Wiley &*

Sons, Inc.: New York, **Vol. 1**, pp. 1-29 (1980).

[29] Pil, P. Lippard, S. J., In: Encyclopedia of Cancer, J. R. Bertino, *Ed. Academic Press: San Diego,* CA, **Vol. 1**, pp. 392-410 (1997).

[30] Bertini, I., Gray, H. B., Lippard, S. J., Valentine, J. S. Bioinorganic Chemistry. *University Science Books: Sausalito*, CA, (1994).

[31] Kelland, L. R., Murrer, B. A., Abel, G., Giandomenico, C. M., Mistry, P., Harrap, K. R., Ammine amine platinum(IV) dicarboxylate – a novel class of platinum complex exhibiting selective cytotoxicity to intrinsically cisplatin-resistant human ovarian-carcinoma cell-lines, *Cancer Research*, **52**, pp. 822-828 (1992).

[32] Peréz, J. M., Fuertes, M. A., Alonso, C. Navarro-Ranninger, C., Current status of the development of trans-platinum antitumor drugs, *Critical Rev. in Oncology/Hematology*, **35**, 109 (2000).

[33] Hogan, J. J., Study of the ^{141}Pr(p,xn) reactions from 10-85 MeV. J. Inorg. Nucl. Chem. **33**, 3627 (1971).

[34] Zeisler, S., Becker, D., Production of the ^{140}Nd/^{140}Pr radionuclide generator for biomedical studies, *J. Label. Compd. Radiopharm.* **42**, (Suppl.1), 921 (1999).

[35] Ananthakrishnan, M., "Iridium 192": in Manual for Reactor Produced Radioisotopes IAEA-TECDOC-1340, 116 (2003).

[36] Akaboshi, M., "Platinum 195m": in Manual for Reactor Produced Radioisotopes IAEA-TECDOC-1340, 171 (2003).

[37] Rösch, F., Qaim, S. M., Stöcklin, G., Nuclear data relevant to the production of the positron emitting radioisotope ^{86}Y via the ^{86}Sr(p,n)- and ^{nat}Rb(^{3}He,xn)-processes. *Radiochim. Acta* **61**, 1 (1993).

[38] Denzler, F.-O., Rösch, F., Qaim, S. M., Excitation functions of α-particle induced nuclear reactions on highly enriched ^{92}Mo: comparative evaluation of production routes for ^{94m}Tc. *Radiochim. Acta* **68**, 13 (1995).

[39] Fresenius, W., Jander, G., Handbuch der analytischen Chemie, Zweiter Teil: Qualitative Nachweisverfahren, Band VIII b Elemente der achten Nebengruppe, II (Platinmetalle), 172, *Springer-Verlag OHG*, Berlin, Göttingen, Heidelberg, Germany (1951).

[40] Chakrabarty, S., Tomar, B. S., Goswani, A., Raman, V. A., Manohar, S. B., Preparation of thin osmium targets by electrodeposition. *Nucl. Instr. and Meth.* **B 174,** 212 (2001).

[41] Mushtaq A., Qaim S. M., Excitation functions of α- and ^{3}He-particle induced nuclear

reactions on natural germanium: evaluation of production routes for ^{73}Se, *Radiochim. Acta* **50**, 27 (1990).

[42] Blessing G., Weinreich R., Stöcklin G., Qaim S.M., Production of ^{75}Br and ^{77}Br via the ^{75}As(^{3}He,3n)^{75}Br and ^{77}As(α,3n)^{77}Br reactions using Cu_3As-alloy as high-current target material. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **33**, 333 (1982).

[43] Blessing G., Bräutigam W., Böge H. W., Gad N., Scholten B., Qaim S.M., Internal irradiation system for excitation function measurement via the stacked-foil technique. *Appl. Radiat. Isot.* **46**, 955 (1995).

[44] Blann, M., Preequilibrium decay. *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **25**, 123 (1975).

[45] Dityuk, A. I., Konobeyev, A. Yu., Lunev, V. P., Shubin, Yu. N.: New advanced version of computer code ALICE-IPPE. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria INDC(CCP)-410 (1998).

[46] Udagawa, T., Tamura, T., Formulation of elastic and inelastic break-up-fusion reactions. *Phys. Rev.* **C33**, 494 (1986).

[47] Ignatyuk, A. V., Statistical properties of excited atomic nuclei (in Russian), Energoatamizdat, Moscow (1983). Translated in English by the international Atomic Energy Agency (IAEA), Report INDC-233, Vienna (1985)

[48] Ignatyuk, A. V., Istekov, K. K., Smirenkin, G. N., the role of collective effects in the systematics of nuclear level densities. *Sov. J. Nucl. Phys.* **29**, 450 (1979).

[49] Blokhin, A. I., Ignatyuk, A. V., Shubin, Yu. N., Vibrational enhancement of the level density of nuclei in the iron region. *Sov. J. Nucl. Phys.* **48(2),** 232 (1988).

[50] Ignatyuk, A. V., Weis, J. L., Raman, S., Kahane, S., Density of discrete levels in ^{116}Sn, *Phys. Rev.* **C47**, 1504 (1993).

[51] Blann, M., Importance of the nuclear density distribution on pre-equilibrium decay. *Phys. Rev. Lett.* **28**, 757 (1972).

[52] Blann, M., A-priori Preequilibrium decay models. *Nucl. Phys.* **A213**, 570 (1973).

[53] Weisskopf, V. F., Ewing, P. H., On the yield of nuclear reactions with heavy elements. *Phys. Rev.* **57**, 472 (1940).

[54] Herman, M., Obložinský, P., Capote, N., Trkov, A., Zerkin, V., Sin, M., Carlson, B., Nuclear reaction model code, International Atomic Energy Agency, available as CD, Vienna, Austria (2005).

[55] Bersillon, O., Un programme de modèle optique sphérique, CEA-N-2227, Centre d'Etudes de Bruyères-le Châtel, France (1981).

[56] Běták, E., Obložinský, P., 1993. *PEGAS Pre-Equilibrium-Equilibrium Gamma-And-*

Spin Code (PC version) INDC(SLK)001, IAEA, Vienna.

[57] Sierk, A. J., Macroscopic model of rotating nuclei, *Phys. Rev.* **C33**, 2039 (1986).

[58] Olkowsky, J., Le Pape, M., Gratot, I., Fonction d'excitation de ^{141}Pr(p,n)^{141}Nd jusqu'à 11.1 MeV. *Nucl. Phys.* **23**, 164 (1961).

[59] Gritsyna, V. T., Klyucharev, A. P., Remaev, V. V., Reshetova, L. N., Ratio of the cross sections for the production of the isomer and ground states of nuclei in the (p,n) reaction at energies from the threshold to 20 MeV. *Soviet Phys JETP* **17**, No 6, 1186 (1963).

[60] Vermeulen, C., Steyn, G. F., Nortier, F. M., van der Walt, T. N., Szelecsényi, F., Kovacs, Z., Qaim, S. M., Excitation functions and production rates of radionuclides produced in the proton bombardment of ^{nat}Pr and ^{nat}La. *Proc. Int. Conf. Nuclear Data For Science and Technology, Santa Fe, USA, September 2004*, AIP Conference Proceedings, **Vol. 769**, part two,1650 (2005).

[61] Shubin, Yu. N., Lunev, V. P., Konobeyev, A. Yu., Dityuk, A.I., MENDL-2P Proton Reaction data library for Nuclear activation (Medium Energy Nuclear Data Library), IAEA-NDS-204, Nuclear Data Section, IAEA, Vienna (1998).

[62] Michel, R., Bodemann, R., Busemann, H., Daunke, R., Gloris, M., Lange, H.-J. Klug, B., Krins, A., Leya, I., Luepke, M., Neumann, S., Reinhardt, H., Schnatz-Buettgen, M., Herpers, U., Schiekel, Th., Sudbrock, F., Holmqvist, B., Conde, H., Malmborg, P., Suter, M., Dittrich-Hannen, B., Kubik, P.-W.,Synal, H.-A., Filges, D., Cross Sections for the Production of Residual Nuclides by low- and medium-energy protons from the target elements C, N, O, Mg, Al, Si, Ca, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Sr, Y, Zr, Nb, Ba and Au. *Nucl. Instr. Meth,* **B 129,** 153 (1997).

[63] Tárkányi, T. F., Kiraly, B., Ditrói, F., Takács, S., Csikai, J., Hermanne A., Uddin, M. S., Hagiwara, M., Baba, M., Ido, T., Shubin, Yu., Dityuk, A. I., Activation cross-sections of proton induced nuclear reactions on iridium. *Nucl. Instr. Meth.* **B**, in press.

[64] Groppi, F., Birattari, C., Bonardi, M., Gallorini, M., Gini L., Thin target excitation functions for (α,xn) reactions on osmium targets for platinum radiotracer production. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **249,** 289 (2001).

[65] Rhenshaw, E., Thompson, A., Tracer studies to locate the site of platinum ions within filamentous and inhibited cells of escherichia coli. *J. Bacteriol*. **94**, 1915 (1967).

[66] Grant, G., Yaffe, L., The spallation of iridium with protons of energies 9 – 87 MeV. *Can. J. Chem.* **41**, 2533 (1963).

Danksagung

Meinen Dank schulde ich Herrn Prof. Dr. Dr. h. c. S. M. Qaim für die interessante Arbeitsstellung, das gute Arbeitsklima und die Hilfsbereitschaft in allen Belangen.

Bei Herrn Prof. H. H. Coenen möchte ich mich für die Bereitstellung des Arbeitsplatzes und das Interesse an dieser Arbeit bedanken.

Herrn Dr. B. Scholten danke ich für die Anregungen im Bereich der Chemie und der Ergebnisauswertung.

Für die Hilfe in allen Belangen der experimentellen Techniken, vor allem den Bestrahlungen, danke ich Herrn S. Spellerberg.

Herrn W. Bolten danke ich für seine Hilfe bei der Konstruktion von technischen Geräten verschiedener Art.

Herrn H. Printz und Herrn F. Mergner danke ich für die Unterstützung in alle Belangen des Strahlenschutzes.

Für die Zusammenarbeit in Zusammenhang mit den theoretischen Rechnungen möchte ich Herrn Dr. Yu. N. Shubin (posthum) und Herrn Dozent Dr. S. Sudár danken.

Den Mannschaften der Zyklotrone (CV 28 und Injektor des COSY) gilt mein Dank für die Durchführung der Bestrahlungen.

Allen nicht namentlich genannten Mitarbeitern des INC danke ich für die gute Zusammenarbeit und das angenehme Arbeitsklima.

Erklärung

Ich versichere, dass ich die von mir vorgelegte Dissertation selbstständig angefertigt, die benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben und die Stellen der Arbeit - einschließlich Tabellen, Karten und Abbildungen -, die anderen Werken im Wortlaut oder dem Sinn nach entnommen sind, in jedem Einzelfall als Entlehnung kenntlich gemacht habe; dass diese Dissertation noch keiner anderen Fakultät oder Universität zur Prüfung vorgelegen hat; dass sie - abgesehen von unten angegebenen Teilpublikationen - noch nicht veröffentlicht worden ist sowie, dass ich eine solche Veröffentlichung vor Abschluss des Promotionsverfahrens nicht vornehmen werde.
Die Bestimmungen dieser Promotionsordnung sind mir bekannt. Die von mir vorgelegte Dissertation ist von Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. S. M. Qaim betreut worden.

Grevenbroich, im August 2005

Teilpublikationen

Hilgers, K., Sudár, S., Qaim, S.M., Experimental study and nuclear model calculations on the ^{192}Os(p,n)^{192}Ir reaction: comparison of reactor and cyclotron production of the therapeutic radionuclide ^{192}Ir. *Appl. Radiat. Isot.* **63**, 93 (2005).
Hilgers, K., Shubin, Yu. N., Coenen, H.H. and Qaim, S.M., Experimental measurements and nuclear model calculations on the excitation functions of ^{nat}Ce(^{3}He,xn) and ^{141}Pr(p,xn) reactions with special reference to production of the therapeutic radionuclide ^{140}Nd. *Radiochim. Acta,* in press.

Lebenslauf

Name:	Karsten Hilgers
Geburtsdatum:	9. März 1977
Geburtsort:	Grevenbroich
Wohnort:	Hoeninger Straße 3, 41515 Grevenbroich
Staatsangehörigkeit:	deutsch
Familienstand:	ledig
Schulausbildung:	1983 - 1987 Gemeinschaftsgrundschule Grevenbroich-Allrath
	1987 - 1996 Erasmus-Gymnasium Grevenbroich
Wehrdienst:	1996 – 1997 abgeleistet beim Heeresunterstützungskommando
Studium:	WS 1997/98 Beginn des Studiums der Chemie an der Universität zu Köln
	Mai 2002 Beendigung des Diplomstudienganges mit der Abschlussprüfung zum Diplom-Chemiker im Fachgebiet Nuklearchemie
	September 2002 bis August 2005 Anfertigung dieser Promotionsarbeit am Institut für Nuklearchemie der Forschungszentrum Jülich GmbH
Berufliche Tätigkeiten:	12/2001 – 05/2002 studentische Hilfskraft am Institut für Nuklearchemie der Forschungszentrum Jülich GmbH
	09/2002 – 08/2005 wissenschaftliche Hilfskraft am Institut für Nuklearchemie der Forschungszentrum Jülich GmbH

Grevenbroich, den 21.08.2005