

## Kurzzusammenfassung

Das für die PET gut geeignete Radionuklid  $^{73}\text{Se}$  ( $T_{1/2} = 7,15 \text{ h}$ ,  $I_{\beta^+} = 65 \%$ ,  $E_{\beta^+} = 1,3 \text{ MeV}$ ) ist als höheres Homolog des Schwefels vor allem für analoge Markierungen von Schwefelverbindungen, aber auch für authentische Markierungen von Selen-haltigen Pharmaka, wie z.B. Ebselen, für *in vivo* Untersuchungen von großem Interesse.

Die zur Produktion von  $^{73}\text{Se}$  bisher bekannten Wirkungsquerschnitte der Protonen-induzierten Kernreaktion  $^{75}\text{As}(p,3n)^{73}\text{Se}$  sowie der zum isotypen Nebenprodukt führenden Kernreaktion  $^{75}\text{As}(p,n)^{75}\text{Se}$  wurden zur Verbesserung der Datenlage untersucht. Für die Bildung von  $^{75}\text{Se}$  mit  $E_p = 41 \rightarrow 25,5 \text{ MeV}$  wurden Wirkungsquerschnitte von  $17 \pm 0,2$  bis  $31 \pm 1,9 \text{ mbarn}$  bestimmt, was im Gegensatz zu bisherigen Annahmen auf eine niedrigere isotope Verunreinigung in der  $^{73}\text{Se}$ -Produktion hinweist. Das Maximum der Wirkungsquerschnitte von  $285 \pm 15 \text{ mbarn}$  zur  $^{73}\text{Se}$  Bildung über die  $^{75}\text{As}(p,3n)$ -Reaktion wurde bei  $35,0 \pm 0,2 \text{ MeV}$  bestimmt. Die Wirkungsquerschnitte der Kernreaktion  $^{75}\text{As}(p,pn)^{74}\text{As}$  wurden erstmals oberhalb von  $30 \text{ MeV}$  ermittelt. Diese betragen zwischen  $131 \pm 14$  und  $263 \pm 15 \text{ mbarn}$ , was eine erste Abschätzung für die Bildung des Radionuklids im Energiebereich von  $E_p = 40 \rightarrow 30 \text{ MeV}$  erlaubt.

Zur Isolierung von ungeträgertem Radioselen aus einem Protonen-bestrahlten  $\text{Cu}_3\text{As}$ -Target wurde eine ionenchromatographische Methode unter Verwendung des längerlebigen  $^{75}\text{Se}$  ( $T_{1/2} = 119,7 \text{ d}$ ,  $100 \%$  EC) durch Bestimmung von Verteilungskoeffizienten und Trennfaktoren optimiert. Dabei wurde n.c.a. Radioselen mit einer radiochemischen Ausbeute von  $91 \pm 2 \%$  abgetrennt. Für die Speziation des n.c.a. Radioselens wurde eine ionenchromatographische Methode entwickelt, mit der gezeigt werden konnte, dass das abgetrennte Produkt als reines Selenit vorliegt.

Durch eine Reduktion des n.c.a. Radioselens mit Hydrazin zu  $\text{Se}^0$  für die anschließende Überführung in eine benzolische Lösung wurde eine Abhängigkeit des Extraktionsverhaltens vom gewählten Reduktionsmittel untersucht, wobei die Bildung eines extraktionsfähigen, schwefelhaltigen Zwischenprodukts ausschlaggebend zu sein scheint. Zur Überführung des reduzierten Radioselens in Benzol mit einer radiochemischen Ausbeute von ca.  $92 \%$  für die weitere Markierungssynthese war eine Extraktionszeit von  $6 \text{ h}$  notwendig. Anhand der n.c.a. Synthese von  $^{75}\text{Se}$ -Ebselen, bei der eine radiochemische Ausbeute von  $18$  bis  $29 \%$  erhalten wurde, konnte die Eignung der derart erhaltenen benzolischen Radioselen-Lösung für n.c.a. Radiosynthesen gezeigt werden.

## Abstract

The positron emitter  $^{73}\text{Se}$  ( $T_{1/2} = 7.15$  h,  $I_{\beta^+} = 65$  %,  $E_{\beta^+} = 1.3$  MeV) is a suitable radionuclide for PET studies. As a higher homolog to sulphur it is very interesting for analog labelling of sulphur-compounds and also for authentic labelling of drugs like Ebselen for *in vivo* use.

The reaction cross sections for the production of  $^{73}\text{Se}$  and its isotopic by-product  $^{75}\text{Se}$  by the  $^{75}\text{As}(p,3n)^{73}\text{Se}$  and  $^{75}\text{As}(p,n)^{75}\text{Se}$  nuclear reactions were remeasured and extended to strengthen the available data. The reaction cross sections of the  $^{75}\text{Se}$  formation at  $E_p = 41 \rightarrow 25.5$  MeV was determined and amounted from  $17 \pm 0.2$  to  $31 \pm 1.9$  mbarn, leading to a lower isotopic impurity than so far assumed. The maximum cross section of  $285 \pm 15$  mbarn for  $^{73}\text{Se}$  production by the  $^{75}\text{As}(p,3n)$ -reaction was found at  $35 \pm 0.2$  MeV. The cross section data of the  $^{75}\text{As}(p,pn)^{74}\text{As}$  nuclear reaction in the energy range above  $E_p = 30$  MeV was investigated for the first time and amounted from  $131 \pm 14$  to  $263 \pm 15$  mbarn. This allows a first estimation for the formation of  $^{74}\text{As}$  in the energy range of  $40 \rightarrow 30$  MeV.

In order to isolate n.c.a. radioselenium from the proton-irradiated  $\text{Cu}_3\text{As}$ -target, a ionchromatographic method was optimized by determination of mass distribution coefficients and separation factors, using the longer lived  $^{75}\text{Se}$  ( $T_{1/2} = 119,7$  d, 100 % EC). By this procedure a radiochemical yield of  $91 \pm 2$  % of n.c.a. radioselenium was achieved. For the speciation of the n.c.a. radioselenium a ionchromatographic method was developed, which showed that the final product was obtained in form of pure selenite.

For further labelling with n.c.a. radioselenium, the reduction of the selenium species to  $\text{Se}^0$  was realized by using hydrazine to investigate the dependence between the reducing agent and the extraction behavior of the n.c.a. radioselenium. Hereby, the formation of an extractable sulfur-containing intermediate appears to be essential. For the transfer of n.c.a.  $^{75}\text{Se}$  into benzene with a radiochemical yield of ca. 92 %, however, a 6 h extraction was necessary. With the example of the synthesis of n.c.a. [ $^{75}\text{Se}$ ]Ebselen, leading to a total radiochemical yield of 18 to 29 %, the suitability of the benzolic radioselenium solution for radiosynthesis, obtained by the way described, could be demonstrated.