



Institut für Nuklearchemie

***Kernchemische Untersuchungen
zur Produktion der medizinisch relevanten
längerlebigen Positronenstrahler
Iod-120 und Iod-124***

Alexander Hohn

***Kernchemische Untersuchungen
zur Produktion der medizinisch relevanten
längerlebigen Positronenstrahler
Iod-120 und Iod-124***

Alexander Hohn

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3838
ISSN 0944-2952
Institut für Nuklearchemie Jül-3838
D 38 (Diss., Köln, Univ., 2000)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland
☎ 02461/61-5220 · Telefax: 02461/61-6103 · e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de

Abstract

The radioisotopes ^{120g}I ($T_{1/2} = 1.35$ h; $E_{\beta^+} = 4.0$ MeV; $I_{\beta^+} = 56$ %) and ^{124}I ($T_{1/2} = 4.18$ d; $E_{\beta^+} = 2.13$ MeV; $I_{\beta^+} = 25$ %) appear to be very promising for quantitation of radioiodine-labelled SPECT-radiopharmaceuticals via positron emission tomography (PET). With this aim, several production routes of these radioisotopes were investigated. The work consisted of nuclear data measurements, target development, chemical separations and quality control of the product.

For nuclear data measurements via the stacked-foil technique, thin samples were prepared by electrolytic deposition of highly enriched ^{120}Te (99 %) and ^{125}Te (98 %) on Ti-backing. Excitation functions of the nuclear reactions $^{120}\text{Te}(p,xn)^{119,120m,120g}\text{I}$ (up to 35 MeV), $^{120}\text{Te}(d,xn)^{120m,120g,121}\text{I}$ (up to 14 MeV) and $^{125}\text{Te}(p,xn)^{119,120m,120g,121,122,123,124,125}\text{I}$ (up to 100 MeV) were measured for the first time. In addition to experimental studies, theoretical model calculations using the modified hybrid model code ALICE-IPPE and the Hauser-Feshbach code STAPRE were performed. The experimental and theoretical excitation functions calculated by ALICE-IPPE generally showed good agreement. For the calculation of the energy dependence of the isomeric cross section ratio of the isomeric pair $^{120m}\text{I}/^{120g}\text{I}$ the STAPRE code was used. From the results of the STAPRE calculations, the excitation energy of ^{120m}I was deduced to be 550 ± 50 keV and its spin and parity as 4^+ .

The β^+/EC ratio in the decay of ^{120g}I , i. e. the β^+ emission intensity, was measured for the first time using a very clean ^{120g}I source. Highly enriched ^{120}Te was irradiated with 15 MeV protons, followed by a chemical separation of radioiodine. Both γ -ray and X-ray spectroscopy were applied. The literature values for the I_{β^+} of ^{120g}I range between 39 and 81 %. Measurements in this work lead to a value of 56 ± 3 %.

For production of ^{124}I and ^{120g}I in mCi amounts (200-400 MBq), $^{124}\text{TeO}_2$ (200 mg), $^{122}\text{TeO}_2$ (50 mg) and $^{120}\text{TeO}_2$ (30 mg) targets were irradiated with protons of 14.5 MeV, 35 MeV and 15 MeV, respectively, and the radioiodine was separated by dry distillation. Some separation parameters like temperature, time, pressure of flow gas, etc. were optimised. The separated product was subjected to radionuclidic quality control. Thereafter PET-Phantom measurements with ^{120g}I were done on a Scanditronix PC4096-15WB PET-Scanner to determine the quality of scans. The results are looking very promising.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Kernreaktionen	1
1.2	Energetik von Kernreaktionen	3
1.3	Reaktionswirkungsquerschnitte und Anregungsfunktionen	4
1.4	Experimentelle Methoden zur Ermittlung von Anregungsfunktionen	6
1.4.1	Bestrahlungsexperimente	8
1.4.2	Energiedegradierung	8
1.4.3	Energiebestimmung	10
1.4.4	Flußbestimmung	11
1.4.5	Aktivitätsbestimmung	12
1.5	Berechnung der Produktionsausbeute	13
1.6	Kernmodellrechnungen zur Ermittlung von Anregungsfunktionen	14
1.7	Rolle der Kernreaktionsdaten bei der Optimierung von Produktionsprozessen ..	15
1.8	Bildgebende Verfahren in der Nuklearmedizin	16
1.8.1	Szintillationsaufnahmen	16
1.8.2	Single-Photon-Emissions-Computer-Tomographie (SPECT)	17
1.8.3	Positronen-Emissions-Tomographie (PET)	17
1.9	Radionuklide für die Emissions-Tomographie	19
1.9.1	Radionuklide für SPECT	19
1.9.2	Radionuklide für PET	19
1.10	Positronenemittierende Isotope ^{120}gI und ^{124}I	20
1.10.1	Status der Produktion von ^{120}gI und ^{124}I	23
2	Problemstellung	25
3	Experimentelles	29
3.1	Reaktionsschwellen der untersuchten Reaktionen	29
3.2	Angereicherte Materialien	29
3.3	Probenpräparation für Kerndatenmessungen	30

3.4	Aufbau eines Folienstapels.....	32
3.5	Durchführung der Bestrahlungsexperimente für Kerndatenmessungen.....	35
3.6	Energiebestimmung.....	38
3.7	Bestimmung der Radioaktivität	38
3.8	Energiekalibrierung und Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors.....	42
3.9	Aktivitätsbestimmungen	43
3.10	Fehlerbetrachtung	44
3.11	Bestimmung des Positronenanteils beim Zerfall von ^{120g}I	46
3.12	Experimente zur Produktion von ^{120g}I und ^{124}I	48
3.13	Entwicklung einer Apparatur zur Abtrennung des Radioiods	51
3.14	Markierungsversuche.....	54
4	Kernmodell-Rechnungen.....	57
4.1	Rechencode ALICE-IPPE.....	57
4.2	Rechencode STAPRE	58
5	Ergebnisse und Diskussion.....	61
5.1	Kernreaktionen zur Produktion von ^{120g}I	61
5.1.1	Protoneninduzierte Kernreaktionen an ^{120}Te	61
5.1.2	Deuteroneninduzierte Kernreaktionen an ^{120}Te	63
5.2	Hybridmodellrechnungen der protonen- und deuteroneninduzierten Kernreaktionen an ^{120}Te	65
5.3	Statistische Modellrechnungen zur Verteilung der isomeren Zustände bei protonen- und deuteroneninduzierten Kernreaktionen an ^{120}Te	66
5.4	Integrale Ausbeuten der protonen- und deuteroneninduzierten Reaktionen an ^{120}Te	70
5.5	Vergleichende Studie über die Reaktionen zur Produktion von ^{120g}I	72
5.6	Bestimmung des Positronenanteils beim Zerfall von ^{120g}I	73
5.7	Kernreaktionsdaten zur Produktion von ^{124}I	76
5.7.1	Kernmodellrechnungen der protoneninduzierten Reaktionen an ^{125}Te	79
5.7.2	Integrale Ausbeuten protoneninduzierter Reaktionen an ^{125}Te	80
5.8	Chemische Trennung des Radioiods vom Targetmaterial.....	82

5.9	Produktion von ^{120}gI und ^{124}I in MBq-Mengen	84
5.10	Phantom - Messungen	86
5.11	Markierung von 4-Methoxy-N-methylbenzamid und Methyltyrosin.....	90
6	<u>Zusammenfassung.....</u>	<u>91</u>
7	<u>Literatur</u>	<u>95</u>

1 Einleitung

Diese Arbeit befaßt sich mit der Entwicklung von Produktionsmethoden zweier positronenemittierender Radioisotope des Iods. Zu diesem Zweck sollen verschieden angereicherte Targets aus Tellur an Zyklotronen bei unterschiedlichen Energien bestrahlt werden. Aus den so gewonnenen Kernreaktionsdaten lassen sich die optimalen Produktionsbedingungen ableiten. Im Hinblick auf die Anwendung der Radionuklide in der Nuklearmedizin ist eine Produktion unter optimalen Bedingungen unbedingt erforderlich.

1.1 Kernreaktionen

Kommt ein Projektil einem Kern so nahe, daß Kernkräfte wirksam werden, dann tritt eine Kernreaktion ein. Der entstehende Produktkern kann sowohl radioaktiv als auch stabil sein. Im Energiebereich bis zu 100 MeV unterscheidet man bei binuklearen Kernreaktionen $A+x \rightarrow y+B$, oder in der Kurzschreibweise $A(x,y)B$, zwischen verschiedenen Kernreaktionstypen.

Ist die Energie des Projektils zu klein, um in den Targetkern einzudringen, so werden Streuprozesse beobachtet. Es tritt eine Wechselwirkung des elektrostatischen Feldes des Projektils mit dem elektrostatischen Feld des Targetkerns auf. Wird im Verlauf dieser Wechselwirkung Energie vom Projektil auf den Targetkern übertragen, so spricht man von einer *inelastischen Streuung*. Bei der Energieübertragung sind nur solche Energiebeträge erlaubt, die der Differenz zweier Kernenergieniveaus des Targetkerns entsprechen. Sind die Energien von Projektil und Targetkern nach dem Streuprozess unverändert, so spricht man von einer *elastischen Streuung*.

Im Energiebereich bis zu 25 MeV finden bevorzugt *Compoundkern-Reaktionen* statt. Nach dem Compoundkern-Modell [1,2] wird die Energie eines eindringenden Teilchens in einer Vielzahl intranuklearer Übergänge auf alle Nukleonen eines Kerns statistisch verteilt. Es entsteht ein sogenannter Compoundkern, der innerhalb von 10^{-16} bis 10^{-13} s zerfällt der Compoundkern. Da die Energieverteilung auf alle

Nukleonen im Kern statistisch verteilt ist, erfolgt die Emission von Nukleonen beim Zerfall symmetrisch um 90° .

Im Energiebereich zwischen 10 MeV und 100 MeV gehen die *Compoundkern-Reaktionen* in die *Precompound-Reaktionen* über. Bei diesem Reaktionstyp findet die Emission von Teilchen statt, bevor die Energie des Projektils gleichmäßig auf alle Nukleonen des Targetkerns verteilt ist. Die Emission von Teilchen aus dem Targetkern verläuft daher leicht vorwärtsgerichtet (bezogen auf die Richtung des Projektils). Da die Emission von Teilchen aus dem Targetkern vor Erreichen des Gleichgewichtes stattfindet, verläuft die *Precompound-Reaktion* schneller (10^{-18} s) als die *Compoundkern-Reaktion*

Bei Projektilenergien oberhalb 50 MeV und leichten Targetkernen ($A < 30$) finden überwiegend *Direktprozesse* statt. Die Energie des Projektils wird bei diesen Prozessen auf ein einzelnes oder mehrere Nukleonen des Targetkerns übertragen. Da die Reaktion nur an der Oberfläche des Targetkerns stattfindet, verläuft sie schneller (10^{-21} s) als die *Precompound-Reaktion*. Eine zeitliche Abfolge verschiedener Kernreaktionen ist in Abb. 1 dargestellt.

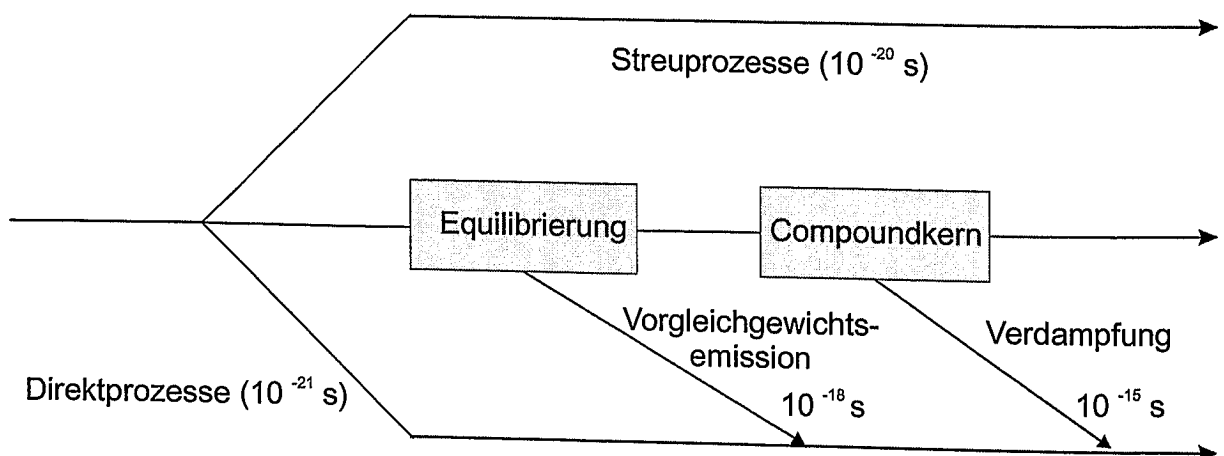


Abb. 1 Zeitliche Abfolge verschiedener Kernreaktionen [3]

1.2 Energetik von Kernreaktionen

Für eine einfache binukleare Kernreaktion $A(x,y)B$ gelten die Gesetze der Energie- und Impulserhaltung. Unter der Annahme

- alle Teilchen befinden sich vor und nach der Reaktion im energetischen Grundzustand
- die kinetische Energie der Targetkerne sei vernachlässigbar klein

ergibt sich aus der Einsteinschen Beziehung

$$m_A^0 \cdot c^2 + m_x^0 \cdot c^2 + E_x^k = m_y^0 \cdot c^2 + E_y^k + m_B^0 \cdot c^2 + E_B^k \quad (1)$$

mit 0 als Bezeichnung für die Ruhemasse

k für die kinetische Energie

c = Lichtgeschwindigkeit

Die Differenz zwischen der Summe der Ruheenergien der Edukte und der Summe der Ruheenergien der Produkte bezeichnet man als Q-Wert. Aus Gleichung (1) erhält man:

$$(m_A^0 + m_x^0 - m_y^0 - m_B^0) \cdot c^2 = E_y^k + E_B^k - E_x^k = Q \quad (2)$$

Wird bei einer Reaktion Energie frei (exoenergetische Reaktion) so hat der Q-Wert ein positives Vorzeichen. Bei einem negativen Q-Wert (endoenergetische Reaktion) muß die benötigte Anregungsenergie durch die kinetische Energie des Projektils aufgebracht werden.

Da die Anregungsenergie mindestens so groß sein muß wie die für die Kernreaktion benötigte Energie -Q, ergibt sich eine Mindest- oder Schwellenenergie für das Projektil x von

$$E_{x(s)} = -Q \left(1 + \frac{M_x}{M_A} \right) \quad (3)$$

mit M = Nuklidmasse in der atomaren Masseneinheit [u]

Bei Kernreaktionen, bei denen geladene Teilchen entweder in den Kern eindringen oder aus ihm austreten, müssen die Teilchen eine zusätzliche elektrostatische Abstoßung V_C (Coulombbarriere) überwinden.

$$V_C = 1,2 \frac{Z_x \cdot Z_A}{A_x^{1/3} + A_A^{1/3}} \text{MeV} \quad (4)$$

mit A = Massenzahl des Kerns

Die gesamte Energieschwelle einer Kernreaktion setzt sich aus der Schwellenenergie und der Coulombbarriere zusammen. Die experimentell beobachteten Reaktionsschwellen liegen aber oft unter den rechnerisch ermittelten Energieschwellen, da durch quantenmechanische Effekte die emittierten Teilchen die Coulombbarriere durchtunneln können.

1.3 Reaktionswirkungsquerschnitte und Anregungsfunktionen

Die Ausbeute einer Kernreaktion ist proportional zur Targetkerndichte (Anzahl der Targetkerne pro Flächeneinheit) und dem Projekttilfluß. Da während der Bestrahlung radioaktive Produktkerne auch wieder zerfallen, folgt für die Nettobildungsrate der Produktkerne:

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot I \cdot N_A - \lambda \cdot N_B \quad (5)$$

σ = Reaktionswirkungsquerschnitt der Kernreaktion

I = Projekttilfluß

λ = Zerfallskonstante des Produktkerns

N_A = Teilchenzahldichte der Targetkerne

N_B = Anzahl der Produktkerne

Die Integration der Gl. 5 in den Grenzen 0 bis t führt zu der bekannten Aktivierungsgleichung

$$A_B = N_B \cdot \lambda = \sigma \cdot I \cdot N_A (1 - e^{-\lambda t}) \quad (6)$$

mit A_B = Aktivität des Produktnuklids

Durch Umstellung von Gl. 6 erhält man für den Reaktionswirkungsquerschnitt σ

$$\sigma = \frac{A \cdot M \cdot F}{m \cdot N_A \cdot I \cdot H \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t}\right)} \quad (7)$$

mit A = Aktivität des Produktnuklids bei Bestrahlungsende (EOB)

M = Molmasse des Targetnuklids

F = Targetfläche

m = Targetmasse

N_A = Avogadro - Konstante

I = Projekttilfluß

H = Häufigkeit des Targetnuklids

t = Bestrahlungsdauer

Der Reaktionswirkungsquerschnitt σ stellt ein Maß für die Wahrscheinlichkeit einer Wechselwirkung eines Projektils mit einem Targetkern dar. Die allgemein gebräuchliche Betrachtungsweise des Wirkungsquerschnittes geht von der Vorstellung aus, daß das bombardierende Teilchen ein Punkt und der Targetkern ein zur Strahlrichtung senkrecht stehende Kreisscheibe ist (Abb. 2). Nimmt man an, daß jeder Treffer in diese gedachte Zielscheibe zur entsprechenden Kernreaktion führt, dann drückt die Fläche der Scheibe die Wahrscheinlichkeit und damit auch die Reaktionsausbeute aus. Nach dieser Betrachtungsweise besitzt der Wirkungsquerschnitt die Dimension einer Fläche. Die Angabe der Einheit erfolgt üblicherweise in barn ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$).

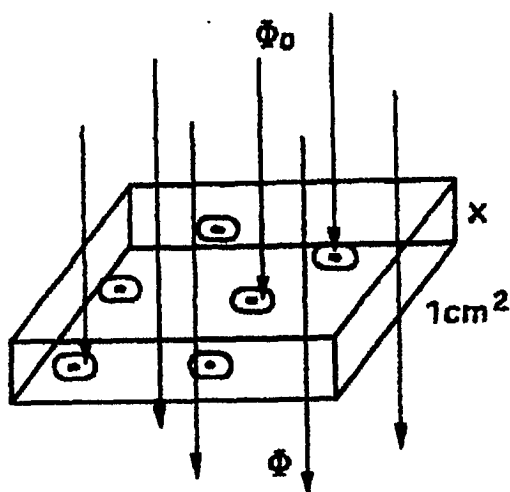


Abb. 2 Bildliche Darstellung des Wirkungsquerschnittes

Weil der Reaktionswirkungsquerschnitt energieabhängig ist, gilt die Aktivierungsgleichung nur für hinreichend dünne Targetschichten. Eine graphische Auftragung des Wirkungsquerschnittes gegen die Projektilenergie nennt man *Anregungsfunktion*. Mit ihrer Hilfe lassen sich Aussagen über die mögliche Ausbeute einer Kernreaktion machen. Sind auch die Anregungsfunktionen aller möglichen Konkurrenzreaktionen bekannt, so sind auch Aussagen über Produktreinheit und Isomerenverteilung einer Kernreaktion möglich.

1.4 Experimentelle Methoden zur Ermittlung von Anregungsfunktionen

Zur Ermittlung von Anregungsfunktionen werden Reaktionswirkungsquerschnitte bei unterschiedlichen Energien bestimmt. Diese Bestimmung kann über On-Line oder Off-Line Methoden erfolgen.

In der einfachsten Form der On-Line Methode wird der Projektilfluß einmal mit Target und einmal ohne Target gemessen. Aus der Differenz im Projektilfluß läßt sich die Zahl der Projektile berechnen, die an einer Reaktion teilgenommen haben. Diese Methode wird im Allgemeinen nur bei thermischen Neutronen, deren Fluß mit BF_3 -Zählrohren gemessen wird, und bei Protonen, deren Fluß mit einem Faraday-Becher

gemessen wird, angewandt. Dabei ist es wichtig einen konzentrierten Strahl zu verwenden, um keine Projektile durch Streueffekte zu verlieren. Aufwendiger ist es, Teilchen oder γ -Quanten zu messen, die bei einer Kernreaktion emittiert werden. Hierzu wird eine geeignete Meßanordnung während der Bestrahlung bis zu 60° um das Target bewegt. Emittierte γ -Quanten werden dabei mit Halbleiterdetektoren gemessen. Die Messung der emittierten Neutronen erfolgt meist durch Flugzeitspektrometer. Werden bei der Kernreaktion geladene Teilchen emittiert, dann kommt oft ein Meßsystem zum Einsatz, das aus zwei Halbleiterdetektoren besteht. Der erste Detektor ist ein Durchschußdetektor, der zur Identifizierung des Teilchens dient. Durchfliegt ein Teilchen diesen Detektor, so wird ein Signal detektiert, dessen Amplitude proportional zum Energieverlust des Teilchens im Detektor ist. Der Energieverlust ist dabei proportional zum Quadrat der Teilchenladung. Hinter dem Durchschußdetektor befindet sich der zweite Detektor, der die Energie der Teilchen mißt. Die Reaktionswirkungsquerschnitte lassen sich durch Integration der emittierten Teilchen über die Energie und den Winkel bestimmen. Da aber im Allgemeinen Messungen über einen Winkel bis zu ca. 60° durchgeführt werden, liefert die Integration keine exakten Werte. Ein weiterer Nachteil der On-Line Methoden liegt darin, daß immer nur ein Target bestrahlt werden kann. Von Vorteil bei den On-Line Methoden ist, daß neben den Reaktionswirkungsquerschnitten auch zwischen verschiedenen Reaktionen und Reaktionsmechanismen unterschieden werden kann.

Bei der Off-Line Methode beginnen die Messungen erst nach Ende der Bestrahlung. Handelt es sich bei den Produkten der Kernreaktion um stabile Isotope, so werden diese vom Target chemisch abgetrennt und nachgewiesen, z.B. mittels Massenspektrometrie. Bei radioaktiven Produkten oder emittierten Partikel kann die Messung über den radioaktiven Zerfall erfolgen. Dazu ist es manchmal nötig, eine chemische Trennung vorzunehmen. Die Bestimmung der Reaktionswirkungsquerschnitte erfolgt nach der Aktivierungsgleichung. Dazu wird die Aktivität der Produktkerne auf Ende der Bestrahlung zurückgerechnet. Werden Isotopenmischungen bestrahlt, dann können gleiche Produkte über verschiedene Reaktionen gebildet werden. Mit Hilfe der Off-Line Methoden lassen sich dann, im Gegensatz zu den On-Line Methoden, nur kumulative Wirkungsquerschnitte berechnen. Auch Aussagen über den Reaktionsmechanismus sind nicht möglich. Ein Vorteil von Off-Line Methoden liegt in der exakten Bestimmung von Ausbeuten bei Kernreaktionen. Ein weiterer Vorteil liegt

in der Möglichkeit, mit einem Bestrahlungsexperiment mehrere Proben gleichzeitig zu untersuchen.

In dieser Arbeit liegt das Ziel in der Ausbeutebestimmung verschiedener Kernreaktionen. Da nur hochangereicherte Targets bestrahlt werden, können die verschiedenen Reaktionen durch unterschiedlichen Produkte unterschieden werden. Aus diesem Grund werden alle Untersuchungen nur mit Off-Line Methoden durchgeführt.

1.4.1 Bestrahlungsexperimente

Die Bestimmung einer Anregungsfunktion erfolgt mit der „stacked-foil“ Technik. Dabei werden Stapel aus dünnen Target-, Absorber- und Monitorfolien bestrahlt. Da geladenen Projektile im Folienstapel eine Energieabsorption erfahren, können Wirkungsquerschnitte von verschiedenen Reaktionen bei mehreren Energien in einem einzigen Bestrahlungsexperiment bestimmt werden. Da die Ungenauigkeit bei der Berechnung der Projektilenergie in den einzelnen Folien eines Stapels mit jeder weiteren Folie anwächst, werden die Bestrahlungen bei verschiedenen Eintrittsenergien durchgeführt. Auf diese Weise kann die Anzahl der Folien in einem Stapel gering gehalten werden. Voraussetzung dafür ist eine genaue Bestimmung der Eintrittsenergien.

1.4.2 Energiedegradierung

Durchqueren geladene Teilchen Materie, so geben sie durch Stöße mit dem Medium Energie ab. Zu einem großen Teil sind dies Wechselwirkungen mit den Hüllenelektronen, die zu Anregung oder Ionisation der Atome führen. Der Energieverlust durch Ionisation wird durch die *Bethe-Bloch*-Gleichung [4-6] beschrieben.

Näherungsweise gilt:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right) = \frac{z^2 e^4 n_e}{4\pi \epsilon_0^2 v^2 m_e} \left\{ \ln \frac{2m_e v^2}{\langle E_B^{(e)} \rangle} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right\} \quad (8)$$

$$\text{mit } \beta = \frac{v}{c}$$

$$\langle E_B^{(e)} \rangle = \text{mittleres Ionisationspotential}$$

Der Energieverlust hängt also von der Geschwindigkeit und Ladung des Teilchen ab, nicht aber von seiner Masse. Er fällt für kleine Geschwindigkeiten mit $1/v^2$ ab und steigt bei relativistischen Teilchenimpulsen nur logarithmisch wieder an.

Für Elektronen und Positronen kommt neben dem Ionisationsenergieverlust noch ein weiterer wichtiger Prozeß hinzu: die Bremsstrahlung. Dabei strahlt das Elektron beim Abbremsen im Feld eines Kerns Energie in Form von Photonen ab. Dieser Prozeß ist stark material- und energieabhängig und wächst annähernd linear mit der Energie und quadratisch mit der Ladungszahl Z des Mediums an. Der mittlere Energieverlust je Wegelement durch Bremsstrahlung wurde von *Bethe* [4] und *Heitler* berechnet.

Eine von *Williamson et al.* [7] modifizierte *Bethe-Bloch*-Gleichung berücksichtigt eine Verminderung der mittleren Teilchenladung bei niedrigen Teilchenenergien durch Rekombination. Zusätzlich werden Hüllenelektronen aus niedrigen Schalen bei dem Stoßprozeß ausgeschlossen. Aus den Gleichungen von *Williamson et al.* [7] und *Sternheimer* [8] wurde das institutseigene Computerprogramm STACK entwickelt, welches den Energieverlust der Projektile beim Durchgang durch Materie berechnet.

1.4.3 Energiebestimmung

Zur Ermittlung der Anregungsfunktionen ist es wichtig die genaue Energie der Projektile zu kennen. Zusätzlich zur Energiemessung am Zyklotron ist auch eine Energiemessung durch Monitorreaktionen möglich. Zu jeder Energie gibt es bei einer Monitorreaktion einen sehr gut bekannten Wirkungsquerschnitt. Bei zwei Monitorreaktionen mit unterschiedlichen Reaktionsschwellen in einer Monitorfolie läßt sich aus den Literaturwerten zu jeder Energie ein Verhältnis dieser Wirkungsquerschnitte berechnen [9]. Aus Gl. 7 gelangt man zu

$$\frac{\sigma_X}{\sigma_Y} = \frac{A_X \left(1 - e^{-\lambda_Y t} \right)}{A_Y \left(1 - e^{-\lambda_X t} \right)} \quad (9)$$

mit X, Y als Indices für die Produktnuklide X und Y

Wie man aus Gl. 9 ersehen kann, ist das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte bei einer Monitorfolie (und damit bei einer Energie) vom Projekttilfluß und der Targetmasse unabhängig. Ein Vergleich mit den Verhältnissen der Wirkungsquerschnitten aus der Literatur liefert auf diese Weise die Energie der Projektile innerhalb der Monitorfolie. Die Energiebestimmung bei Protonenbestrahlungen erfolgt über die Reaktionen $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{62}\text{Zn}$ und $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{63}\text{Zn}$. Bei Bestrahlungsexperimenten mit Deuteronen werden die Reaktionen $^{nat}\text{Ti}(d,n)^{47}\text{Sc}$ und $^{nat}\text{Ti}(d,x)^{48}\text{V}$ benutzt.

1.4.4 Flußbestimmung

Der Projektilfluß läßt sich während einer Bestrahlung sehr genau mit einem Faraday-Becher, der sich hinter dem Target befindet, messen. Leider ist diese Meßmethode nicht möglich, wenn das Target von hinten gekühlt wird. In diesem Fall wird während der Bestrahlung der Projektilfluß, der auf den Targethalter trifft, mit einem Mikroamperemeter gemessen. Leider sind die Messungen nicht sehr genau, da z.B. durch das Kühlwasser ebenfalls kleinere Ströme entstehen können. Genauere Ergebnisse erhält man über sogenannten Monitorreaktionen. Dabei werden dünne Metallfolien vor und hinter die zu untersuchenden Proben in den Folienstapel eingebaut. Die Wirkungsquerschnitte der Kernreaktionen in diesen Monitorfolien sind in der Literatur gut dokumentiert. Aus diesen Monitorfolien lassen sich damit die Projektilflüsse berechnen. Diese Methode ist besser geeignet die Projektilflüsse zu messen, da keine störenden Effekte während der Bestrahlung auftreten, zudem besitzen diese Monitorfolien die gleiche Bestrahlungsgeometrie wie die zu untersuchenden Proben. Bei dieser Meßmethode muß der Projektilfluß während der gesamten Bestrahlungszeit (besonders bei langen Bestrahlungszeiten) konstant gehalten werden, da über die Monitorfolien nur ein zeitliches Mittel des Projektilflusses gemessen werden kann. Die Monitorreaktionen müssen auf die verwendete Projektilart und den Energiebereich der Projektile im Folienstapel genau abgestimmt sein. Für Protonenbestrahlungen werden dünne Titan-, Aluminium- und Kupferfolien als Monitorfolien verwendet. Die Titanfolien werden im Energiebereich von 5 – 30 MeV eingesetzt [10]. Die interessante Reaktion ist dabei ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x){}^{48}\text{V}$. Im Energiebereich von 5 - 100 MeV ist Kupfer als Monitorfolie geeignet. Hier dient die Reaktion ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(p,xn){}^{62,63}\text{Zn}$ als Monitorreaktion [11-16]. Bei längeren Bestrahlungen wird auch die ${}^{\text{nat}}\text{Al}(p,x){}^{22,24}\text{Na}$ -Reaktion als Monitorreaktion für Protonen benutzt [17,18]. Werden Deuteronen als Projektile eingesetzt, dann dienen Titanfolien zum Monitoring [cf. 19]. Die Monitorreaktionen dabei sind ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x){}^{47}\text{Sc}$ und ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x){}^{48}\text{V}$.

Von entscheidender Bedeutung bei der Flußbestimmung ist die genaue Kenntnis der Projektilenergien in der Monitorfolie.

1.4.5 Aktivitätsbestimmung

Nach den Bestrahlungen wird die Aktivität der Produktnuklide in den Target- und Monitorfolien im allgemeinen mit γ -Detektoren gemessen. Bei den Detektoren handelt es sich um Halbleiterdetektoren aus hochreinem Germanium und Silizium. Vor den eigentlichen Aktivitätsmessungen wird mit Standardpräparaten, deren Aktivität sehr genau bekannt ist, die Ansprechwahrscheinlichkeit der Detektoren bestimmt. Die Ansprechwahrscheinlichkeit beschreibt das Verhältnis der gemessenen Aktivität zur absoluten Aktivität. Dabei ist sehr wichtig, daß die Meßgeometrie bei der Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit identisch ist mit der Meßgeometrie, die bei der Messung der bestrahlten Folie verwendet wird.

Die meisten Aktivitätsmessungen erfolgen zerstörungsfrei, d.h. die Proben werden ohne vorherige chemische Behandlung gemessen. Vorteil dieser Methode ist, daß die Proben sehr schnell gemessen werden können. Des weiteren treten keine Aktivitätsverluste durch eine chemische Abtrennung auf. Gelegentlich ist es jedoch erforderlich, das gewünschte Radionuklid vom bestrahlten Targetmaterial abzutrennen. Dies ist der Fall, wenn Radionuklide verschiedener Elemente gleiche γ -Linien besitzen. Ein anderer Grund für eine chemische Abtrennung liegt vor, wenn die produzierte Hintergrundaktivität die Aktivität des gewünschten Nuklids überdeckt, so daß eine Aktivitätsbestimmung nicht möglich ist.

Gelegentlich werden auch β^- -Zählung bzw. Röntgenspektrometrie zur Aktivitätsmessung eingesetzt. Bei diesen Meßmethoden kann im Gegensatz zur γ -Spektrometrie die Eigenabsorption nicht vernachlässigt werden und muß daher vor der Messung experimentell ermittelt werden. In vielen Fällen ist es unbedingt erforderlich die Produkte vom bestrahlten Targetmaterial abzutrennen und daraus dünne Proben für die Messungen herzustellen. Bei der Röntgenspektrometrie tritt als zusätzliches Problem auf, daß alle Nuklide eines Elements die gleichen Röntgenlinien mit der gleichen Intensität emittieren. Dies trifft allerdings nicht für niederenergetische γ -Strahlung im Röntgenbereich (z.B. ^{125}I mit $E_\gamma = 35 \text{ keV}$) zu.

1.5 Berechnung der Produktionsausbeute

Die Ausbeute dünner Targets läßt sich direkt aus der Aktivierungsgleichung berechnen. Um die Ausbeute dicker Targets zu berechnen muß die Aktivierungsgleichung über den gesamten Energiebereich integriert werden. Für die Ausbeute Y_i eines Nuklids i in einem dicken Targets gilt:

$$Y_i = \frac{N_A}{M \cdot F} \cdot H \cdot I \left(1 - e^{-\lambda_i t}\right) \int_{E_1}^{E_2} \left(\frac{dE}{d(\rho x)}\right)^{-1} \sigma(E) dE \quad (10)$$

Näherungsweise läßt sich die Ausbeute eines dicken Targets berechnen, wenn für den Energiebereich $E_2 \rightarrow E_1$ ein mittlerer Wirkungsquerschnitt angenommen und das Massenbremsvermögen $\frac{dE}{d(\rho x)}$ [MeV·cm²g⁻¹] bzw. die Reichweite $r(E)$ [gcm⁻²] aus Tabellenwerken [7] entnommen wird. Die Gleichung für die Ausbeute vereinfacht sich zu:

$$Y_i = \frac{N_A}{M \cdot F} \cdot H \cdot I \cdot \bar{\sigma} \left(r(E_2) - r(E_1)\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda_i t}\right) \quad (11)$$

Neben dieser Berechnung ist auch eine graphische Bestimmung der dicken Targetausbeute möglich. In einem ersten Schritt unterteilt man den zu berechnenden Energiebereich in viele kleine Energieteilbereiche (Abb. 3). Für jeden Energieteilbereich berechnet man nun die Anzahl der Targetkerne, die benötigt werden um die Projektile um genau diesen Energiebereich zu degradieren. Aus der Anregungsfunktion läßt sich dann diesem Energieteilbereich einen mittleren Wirkungsquerschnitt zuordnen. Mit diesen Daten läßt sich für den Energieteilbereich eine differenzielle Ausbeute berechnen. Die Summe aller differenziellen Ausbeuten ergibt die integrale Ausbeute.

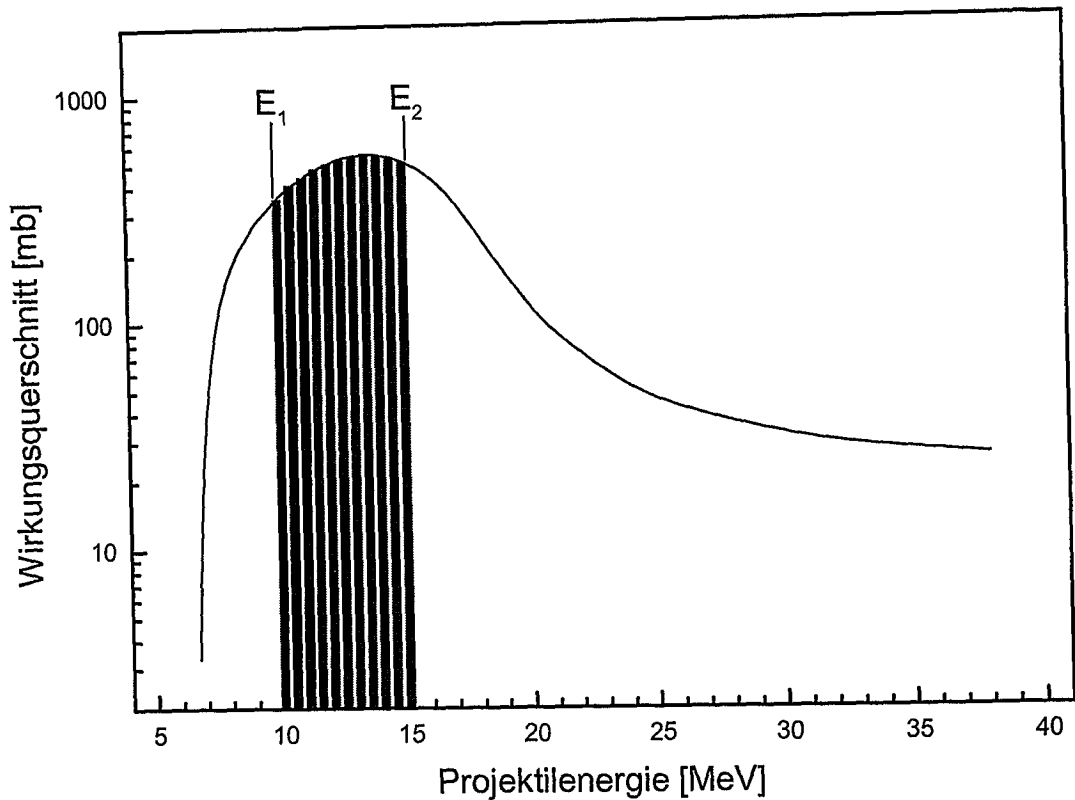


Abb. 3 Schematische Darstellung der Berechnung integraler Ausbeuten

1.6 Kernmodellrechnungen zur Ermittlung von Anregungsfunktionen

Um den Aufbau eines Atomkerns und die Vorgänge, die bei Kernreaktionen ablaufen, zu verstehen wurden Kernmodelle entwickelt. Diese Kernmodelle dienen als Basis für theoretische Rechnungen. Ein Vergleich der theoretischen Ergebnisse mit den experimentell gemessenen Werten ist daher von großer Bedeutung. Exakte Messungen sind nicht nur zur Bewertung von Kernmodellen wichtig, sondern können auch ihrerseits zur Entwicklung neuer Kernmodelle führen. Da auch heute noch in vielen Fällen die Wirkungsquerschnitte nicht mit genügend hoher Genauigkeit berechnet werden können, ist man bei der Beurteilung von Kernreaktionen für Produktionszwecke immer noch auf Messungen angewiesen.

Für die Berechnung von Wirkungsquerschnitten oder den Verhältnissen von Wirkungsquerschnitten sind viele empirische oder semiempirische Programme entwickelt worden. Von großer Bedeutung sind statistische und Precompound Modelle. Auf dem Formalismus von Hauser Feshbach [20] basieren im Niederenergiebereich Programme wie HELGA [cf. 21], GNASH [22], EMPIRE [23] und STAPRE [24]. Dagegen findet im Energiebereich >25 MeV das Exciton-Modell häufig Anwendung. Das gängige Programm hier ist ALICE [25] in verschiedenen Variationen. Die neueste Version ist ALICE-IPPE (1998) [26]. Speziell die beiden letzten Programme werden in der vorliegenden Arbeit eingesetzt um die experimentell ermittelten Anregungsfunktionen theoretisch zu berechnen.

1.7 Rolle der Kernreaktionsdaten bei der Optimierung von Produktionsprozessen

Kernreaktionsdaten sind für die Optimierung von Produktionsprozessen unverzichtbar. Optimierung bedeutet in diesem Fall maximale Ausbeute des gewünschten Nuklids bei minimaler Verunreinigungen durch unerwünschte Nuklide [27,28], welche eine zusätzliche Strahlenbelastung für den Patienten und eine Verschlechterung der Bildqualität bedeuten. Während eine nichtisotope Verunreinigung durch eine chemische Abtrennung entfernt werden kann, ist dies bei isotopischer Verunreinigung nicht möglich. Hier bleibt nur die Möglichkeit durch Verwendung von angereichertem Targetmaterial, geschickte Wahl der Projektilteilchen bzw. -energie und geeignete Bestrahlungszeit die Verunreinigungen zu verhindern bzw. zu minimieren.

Bei manchen Nukliden treten als Verunreinigung unerwünschte isomere Zustände auf, z. B. ^{94m}Tc (^{94g}Tc) oder auch ^{120g}I (^{120m}I). In den meisten Fällen bewirkt eine Veränderung des Energiefensters keine Verbesserung, da das Isomerenverhältnis über einen großen Energiebereich konstant ist. Das Isomerenverhältnis ist in erster Linie nur von der verwendeten Kernreaktion abhängig [29]. Zur Optimierung müssen daher alle Kernreaktionen, die das gewünschte Nuklid liefern, untersucht werden.

1.8 Bildgebende Verfahren in der Nuklearmedizin

In der Nuklearmedizin nutzt man die Tatsache, daß der Körper nicht zwischen radioaktiven und stabilen Isotopen unterscheiden kann. Des weiteren können radioaktiv markierte Verbindungen in so geringen Maße dem Körper verabreicht werden, daß eine Beeinträchtigung des Stoffwechsels nicht stattfindet. Die Nuklearmedizin ermöglicht damit funktionelle Untersuchungen am lebenden Organismus ohne Einfluß auf den Stoffwechsel (zur Übersicht [30,31]).

Beim Zerfall radioaktiver Atomkerne wird Energie in Form von Strahlung freigesetzt. Bei dieser Strahlung kann es sich um geladene Teilchen oder elektromagnetische Strahlung handeln. Während geladene Teilchen im Gewebe nahe an ihrem Entstehungspunkt absorbiert werden, kann die elektromagnetische Strahlung das Gewebe durchdringen und außerhalb des Körpers gemessen werden. In der Nuklearmedizin nutzt man beide Arten von Strahlung. Die Teilchenstrahlung wird zur Therapie eingesetzt, während die elektromagnetische Strahlung in der Diagnostik Verwendung findet. Ein Sonderfall ist die Positronenstrahlung. Hierbei werden Positronen (positiv geladene Anti-Teilchen der Elektronen) freigesetzt. Treffen diese nach Thermalisierung durch umgebendes Gewebe auf Elektronen, so vernichten sie sich gegenseitig unter Aussendung zweier γ -Quanten in einem Winkel von annähernd 180° . Obwohl es sich also um Teilchenstrahlung handelt, liefert sie jedoch indirekt γ -Quanten, die zur Diagnostik eingesetzt werden.

1.8.1 Szintillationsaufnahmen

Bei der Szintillationskamera handelt es sich um einen großflächigen Einkristall aus NaI(Tl) mit einem Kollimator, der Strahlung nur aus einer Richtung durchläßt. Passiert ein γ -Quant den Kollimator und trifft auf den NaI(Tl)-Detektor, so entsteht ein Lichtblitz, der über Sekundärelektronenvervielfacher registriert werden kann. Auf diese Weise läßt sich die zeitliche Änderung und die zweidimensionale Verteilung der Aktivität gleichzeitig registrieren. NaI(Tl)-Detektoren besitzen eine hohe Ansprechwahrscheinlichkeit für γ -Strahlung mit einem Maximum bei ca. 140 keV.

1.8.2 Single-Photon-Emissions-Computer-Tomographie (SPECT)

Bei diesem Verfahren bewegt man eine oder mehrere Szintillationskamaras, die in einer Ebene angeordnet sind, um den zu untersuchenden Körper. So erhält man zweidimensionale Szintigramme, welche die Aktivität in einer ebenen Schicht des Körpers zeigt. Limitiert durch die Größe der Szintillationskamaras können mehrere Schichten des Körpers gleichzeitig aufgenommen werden. Mit Hilfe von Computern lassen sich jetzt aus den zweidimensionalen Szintigramme dreidimensionalen Bildern rekonstruieren. Mit SPECT lassen sich zeitliche Änderungen und räumliche Verteilungen der Aktivität messen. Bei den so gemessenen Aktivitäten handelt es sich jedoch nicht um absolute Aktivitäten, sondern um relative Aktivitäten, da die γ -Quanten auf ihrem Weg vom Entstehungsort zum Detektor unterschiedlich starke Absorption im Körper erfahren. Es gibt aber Ansätze mit Hilfe von Modellrechnungen auch bei SPECT absolut Aktivitäten zu bestimmen [32].

1.8.3 Positronen-Emissions-Tomographie (PET)

Bei der Positronen-Emissions-Tomographie nutzt man die Eigenschaft mancher Atomkerne unter Emission von Positronen zu zerfallen. Der Tomograph [cf. 33-36] besteht aus einer großen Anzahl von γ -Detektoren (Bismut-Germanium-Oxid-Kristalle, kurz: BGO-Kristalle), die zu Detektorringen zusammengeschaltet sind (Abb. 4). Zur Aufnahme werden immer gegenüberliegende Detektorkristalle in Koinzidenz geschaltet, d. h. es werden nur solche Ereignisse registriert, bei denen beide Detektoren eines Detektorpaares innerhalb der Koinzidenzzeit ein Ereignis registrieren.

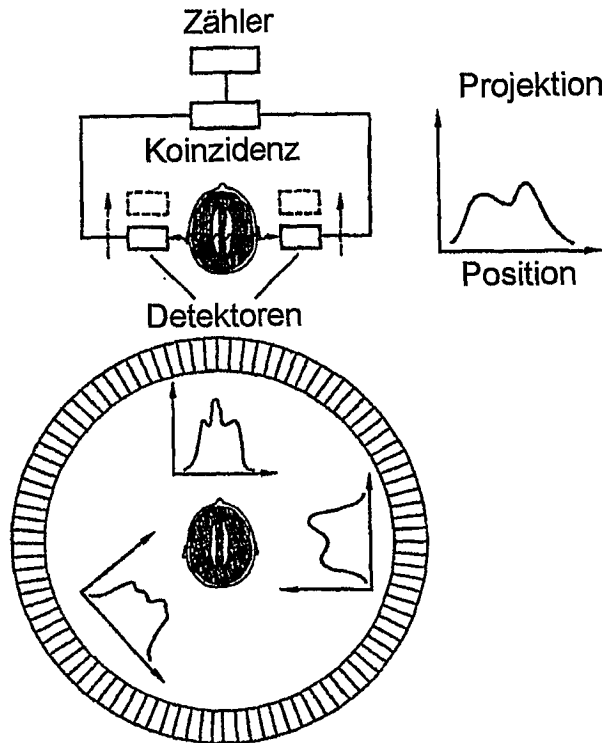


Abb. 4 Schematische Darstellung des Meßprinzips bei PET [37]

Wie bei SPECT werden zweidimensionale Szintigramme aufgenommen, aus denen sich mit Hilfe von Computern dreidimensionale Bilder rekonstruieren lassen. Im Gegensatz zu SPECT sind mit PET absolute Aktivitäten meßbar. Dies ist darin begründet, daß die beiden γ -Quanten den ganzen Körper durchqueren. Bei einem Körperdurchmesser D legt das erste γ -Quant den Weg X_1 und das zweite γ -Quant den Weg X_2 zurück. Die Wahrscheinlichkeit, daß beide γ -Quanten den Körper ohne Wechselwirkungen durchlaufen beträgt:

$$W_{12} = e^{-\mu X_1} \cdot e^{-\mu X_2} = e^{-\mu D} \quad (12)$$

Aus der Gleichung ist ersichtlich, daß die Wahrscheinlichkeit der Detektion nicht vom Entstehungsort der Annihilationsstrahlung abhängt. Die tatsächliche Ansprechwahrscheinlichkeit des PET-Scanners muß für jeden Körper neu bestimmt werden. Dazu wird vor der Aufnahme die Absorption durch den Körper mit einer Standardprobe, die

man um den Körper rotieren lässt, bestimmt. Die Positronen-Emissions-Tomographie eignet sich daher ideal, um Pharmakokinetiken und Rezeptorstudien durchzuführen [cf. 37,38].

1.9 Radionuklide für die Emissions-Tomographie

1.9.1 Radionuklide für SPECT

Für SPECT Untersuchungen kommen Nuklide in Betracht, die nur γ -Strahlung emittieren. Es handelt sich dabei um Nuklide, die durch Elektroneneinfang zerfallen (z.B. ^{123}I , ^{201}Tl) oder durch Isomerenübergang in den Grundzustand übergehen ($^{99\text{m}}\text{Tc}$). Alle erwähnten Nuklide sind für SPECT besonders geeignet, da die Energien ihrer γ -Linien in der Nähe des Maximums der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektorkristalls von 140 keV liegen. Zur Produktion der SPECT-Nuklide ist ein Zyklotron [cf. 39,40] gut geeignet, da es sich um Nuklide mit Neutronenmangel handelt. Eine besondere Bedeutung für die Nuklearmedizin kommt $^{99\text{m}}\text{Tc}$ zu, das jedoch am Reaktor erzeugt wird. Mehr als 90 % aller nuklearmedizinischen Untersuchungen werden mit diesem Nuklid durchgeführt. Der Grund dafür liegt in der leichten Verfügbarkeit des $^{99\text{m}}\text{Tc}$, welches über ein Generatorsystem aus ^{99}Mo gewonnen wird und den Anwender unabhängig von Aktivitätslieferungen macht. Das Mutternuklid ^{99}Mo fällt als Spaltprodukt bei der Uranspaltung an.

1.9.2 Radionuklide für PET

Alle PET-Radionuklide haben einen Neutronenmangel. Die Produktion ist daher praktisch nur an einem Teilchenbeschleuniger möglich*. Nicht alle am Teilchenbeschleuniger produzierbaren Nuklide mit Neutronenmangel zerfallen jedoch ausschließlich unter Emission von Positronen.

* Eine Ausnahme ist z.B. ^{18}F , das in kleinen Ausbeuten auch an einem Reaktor aus $^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ hergestellt werden kann. Reaktionssequenz: $^6\text{Li}(n,\alpha)t$, $^{16}\text{O}(t,n)^{18}\text{F}$

Für die Anwendung als PET-Nuklid ist es daher besonders wichtig, daß das Nuklid einen hohen Positronenanteil beim Zerfall hat und daß dieser Anteil genau bekannt ist.

Von besonderer Bedeutung für PET sind die sogenannten „organischen Positronenemitter“ ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O und ^{18}F [41]. Diese Nuklide besitzen kurze Halbwertzeiten und zerfallen fast vollständig unter Emission von Positronen niedriger Energie (Tabelle 1). Kurze Halbwertzeiten bedeuten eine niedrige Strahlenbelastung für den Patienten. Die niedrigen Positronenenergien führen zu einer hohen Auflösung bei PET-Aufnahmen, da sich die Reichweite der Positronen im Gewebe annähernd linear zur kinetischen Energie der Positronen verhält. Organische Verbindungen lassen sich damit markieren, ohne daß sich die chemischen Eigenschaften der Verbindungen ändern. Aus diesem Grund werden die meisten PET Untersuchungen mit diesen vier Nukliden durchgeführt. Bedingt durch die kurzen Halbwertzeiten ist ein Zyklotron in der Nähe unverzichtbar.

Tabelle 1 Zerfallseigenschaften der „organischen Positronenemitter“ [42]

Nuklid	Halbwertzeit [min]	Positronenanteil [%]	Positronenenergie [keV]
^{11}C	20,4	99,8	960
^{13}N	10,0	99,8	1198
^{15}O	2,05	99,9	1732
^{18}F	109,6	96,7	633

1.10 Positronenemittierende Isotope $^{120\text{g}}\text{I}$ und ^{124}I

Für die Nuklearmedizin sind Iodnuklide von besonderem Interesse. Bezüglich ihrer Größe verhalten sie sich chemisch ähnlich wie Methylgruppen. Das bedeutet für den menschliche Körper, daß er nicht zwischen zwei Verbindungen unterscheiden kann, von denen die erste eine Methylgruppe besitzt und bei der zweiten diese Methylgruppe durch ein Radioiodnuklid ersetzt ist. Aus kernchemischer Sicht ist besonders

interessant, daß sich Radioiodmarkierungen sowohl nukleophil als auch elektrophil ohne Zusatz von Träger durchführen lassen. Da unsere Umwelt arm an Iod ist, kann man Radioiodpharmaka fast schon als trägerfrei* bezeichnen, wohingegen Radiopharmaka z. B. mit ^{11}C , ^{15}O oder ^{18}F nur als trägerarm zu bezeichnen sind. In der Nuklearmedizin existieren eine Vielzahl von Radioiodverbindungen, hauptsächlich mit ^{131}I , ^{125}I und ^{123}I . So wird ^{131}I schon lange zur Therapie der Schilddrüse eingesetzt. Der Einsatz von ^{125}I in der Nuklearmedizin ist fast ausschließlich auf den Radioimmunassay (RIA) [43] begrenzt. Bei diesem Verfahren werden Antigene mit ^{125}I markiert. Zur Untersuchung wird dem Patienten Blut entnommen und mit den markierten Antigenen versetzt. Diese werden selektiv an bestimmte Antikörper gebunden. Nach der Trennung von gebundenen und ungebundenen Antigenen kann die Konzentration der Antikörper berechnet werden. Auf diese Weise können Hormone, Wirkstoffe und ihre Metaboliten im pikomol Bereich bestimmt werden. ^{123}I -Verbindungen werden für Szintillations- und SPECT-Messungen eingesetzt. Da mit diesen Nukliden aber keine quantitativen 3D-Bilder aufgenommen werden können, besteht ein großes Interesse an positronenemittierenden Iodnukliden für PET-Messungen.

Ein Blick auf die Nuklidkarte (Abb. 5) zeigt eine ganze Reihe von positronenemittierenden Iodnukliden. Aber nur die Nuklide ^{120g}I und ^{124}I scheinen für den Einsatz bei PET-Messungen sinnvoll (Tabelle 2). Die Halbwertszeiten der Nuklide ^{118}I , ^{119}I und ^{122}I sind zu kurz für Markierungen. ^{120m}I ist ungeeignet, da es nur in niedriger Ausbeute zu produzieren ist. Das Nuklid ^{121}I besitzt zwar eine günstige Halbwertszeit, aber mit einem Positronenanteil von 10 % ist es für PET-Messungen ungeeignet. ^{120g}I besitzt einen relativ hohen Positronenanteil von 39-81 %. Da es bisher nicht gelungen ist ^{120g}I rein, d.h. ohne störende Positronenemitter zu produzieren, ist der exakte Wert nicht bekannt. Die relativ kurze Halbwertszeit von 81 min ermöglicht die Messung schneller Kinetiken. Leider besitzen die Positronen von ^{120g}I eine relativ hohe kinetische Energie. Deren Einfluß auf die Auflösung von PET-Messungen soll mit Hilfe von Phantommessungen untersucht werden. Phantome sind Hohlkörper mit definierten Strukturen, die für PET-Messungen mit aktiven Lösungen gefüllt werden.

* Trägerfrei sind streng genommen nur Nuklide, deren Element nicht in der Natur vorkommen, z.B. ^{99m}Tc

Zur Bestimmung langsameren Kinetiken wäre ^{124}I geeignet. Mit einer Halbwertszeit von 4,18 Tagen würden sich in-vivo Vorgänge von einigen Tagen verfolgen lassen. Die niedrigen Positronenenergien versprechen zudem eine gute Auflösung.

Um die Einsatzmöglichkeiten zu beurteilen sind aber nicht nur die Halbwertszeit und der Positronenanteil von Bedeutung, sondern auch der Anteil an Auger-Elektronen und die Energie der Positronen. Je höher die Positronenenergien, um so geringer ist die Auflösung von PET-Aufnahmen. Beim EC kann die Energie in Form von Röntgenstrahlung oder durch Emission von Auger-Elektronen abgegeben werden. Da Auger-Elektronen einen hohen Linearen-Energie-Transfer (LET) aufweisen, soll bei diagnostischen Untersuchungen der Anteil von Auger-Elektronen gering sein.

Tabelle 2 Zerfallseigenschaften positronenemittierender Iodnuklide [42]

Nuklid	$T_{1/2}$	I_{β^+} [%]	E_{β^+} [keV]	E_{Auger} [keV]
^{118}gI	13,7 min	92	5412 (33 %) 6018 (17 %)	3,19 (6 %)
^{119}I	19,1 min	51	2090 (46 %)	3,19 (48 %)
$^{120\text{m}}\text{I}$	53 min	63	2156 (11 %) 3502 (41 %)	3,19 (15 %)
$^{120\text{g}}\text{I}$	81,0 min	39-81	3817 (37 %) 4378 (19 %)	3,19 (18 %)
^{121}I	2,12 h	10	1045 (10 %)	3,19 (80 %) 22,7 (10 %)
^{122}I	3,6 min	78	2648 (10 %) 3212 (67 %)	3,19 (18 %)
^{124}I	4,18 d	23	1532 (11 %) 2135 (11 %)	3,19 (63 %)

1.10.1 Status der Produktion von ^{120g}I und ^{124}I

Die Bildung von ^{120g}I ($T_{1/2} = 81 \text{ min}$, $I_{\beta+} = 39\text{-}81 \%$) wurde erstmals 1957 bei Spallationsreaktionen durch Massenseparation beobachtet [44,45]. Die erste eindeutige Identifizierung von ^{120g}I erfolgte 1965 radiochemisch [46]. Bei der Bestrahlung von NaI mit 340 MeV Protonen entstand ^{120g}I indirekt durch Zerfall von ^{120}Xe mit einer Halbwertszeit von 40 min. Die indirekte Produktion von ^{120g}I über den Zerfall von ^{120}Xe ist die einzige bekannte Methode ^{120g}I isomerenrein zu produzieren. Bei der Bestimmung der Positronenenergien wurden zwei Gruppen von Positronen mit Endpunkt-Energien von 2,1 und 4,0 MeV gemessen [46]. Erstmals direkt wurde ^{120g}I 1967 nach Bestrahlung von Tellur mit 150 MeV Protonen gebildet [47]. Bei dieser Reaktion wurde auch zum ersten mal ein metastabiler Zustand von ^{120}I beobachtet. In der Folgezeit wurde ^{120g}I bei verschiedenen Hochenergie- und Schwerionenreaktionen erzeugt [48-56]. Alle bisher aufgeführten Reaktionen haben den Nachteil, daß sie Beschleuniger mit hohen Energien benötigen. Zudem ist die Ausbeute an ^{120g}I meist sehr gering und die Verunreinigung durch andere Iodnuklide hoch. Aus diesem Grunde wurde vor einigen Jahren die Produktion aus hoch angereichertem ^{122}Te untersucht [57,58]. Eine detaillierte Untersuchung dieser Reaktion ergab Verunreinigung durch ^{121}I von etwa 22 % und ein ^{120m}I -Anteil von 25 % [58]. Wie man durch einen Blick auf die Nuklidkarte (Abb. 5) leicht erkennen kann, verspricht eine Produktion aus angereichertem ^{120}Te die höchste Reinheit. Allerdings sind die Kosten für das Targetmaterial sehr hoch, da der Anteil von ^{120}Te an natürlichem Tellur sehr gering ist. Diese Route wurde bisher nicht untersucht.

Die erstmalige Darstellung von ^{124}I ($T_{1/2} = 4,15 \text{ d}$, $I_{\beta+} = 23 \%$) gelang 1938 bei der Bestrahlung von Antimon mit α -Partikel [59]. Anfangs nur als Verunreinigung bei der Produktion von ^{123}I ($T_{1/2} = 13,2 \text{ h}$, 100 % EC) angesehen [cf. 60-63], betrachtet man heute ^{124}I als nützlichen Positronenemitter für PET [cf. 64-67]. In den meisten Fällen wird ^{124}I heute über die $^{124}\text{Te}(d,2n)^{124}\text{I}$ -Reaktion produziert [68-73]. Dieser Produktionsweg liefert eine relativ hohe Ausbeute an ^{124}I , besitzt allerdings den Nachteil, daß immer auch ^{125}I ($T_{1/2} = 60,14 \text{ d}$) entsteht. Dabei ist weniger die lange Halbwertszeit, als vielmehr die starke Emission von Auger-Elektronen bei ^{125}I zu beachten.

Xe 120 40 m Z: 54, N: 66 176,763 0	Xe 121 38.8 m Z: 54, N: 67 178,933 44%	Xe 122 20.1 h Z: 54, N: 68 180,949 41%	Xe 123 2.08 h Z: 54, N: 69 182,978 3%	Xe 124 0.10 Z: 54, N: 70 184,960 0.22	Xe 125 37 s Z: 54, N: 71 186,942 0.10	Xe 126 0.09 Z: 54, N: 72 188,924 0.08	Xe 127 7.4 s Z: 54, N: 73 190,906 0.05	Xe 128 1.91 Z: 54, N: 74 192,888 0.36
I 119 19 m Z: 53, N: 66 175,938 0	I 120 32 m Z: 53, N: 67 177,954 0	I 121 2.12 h Z: 53, N: 68 179,970 0	I 122 3.6 m Z: 53, N: 69 181,986 0	I 123 13.2 h Z: 53, N: 70 183,999 0	I 124 4.15 d Z: 53, N: 71 185,981 0	I 125 60.14 d Z: 53, N: 72 187,963 0	I 126 13.0 d Z: 53, N: 73 189,945 0	I 127 100 Z: 53, N: 74 191,927 0
Te 118 6.0 d Z: 52, N: 66 174,931 0	Te 119 47 d Z: 52, N: 67 176,947 0	Te 120 0.095 Z: 52, N: 68 178,963 0	Te 121 154 d Z: 52, N: 69 180,979 0	Te 122 2.60 Z: 52, N: 70 182,995 0	Te 123 0.908 Z: 52, N: 71 184,987 0	Te 124 4.815 Z: 52, N: 72 186,969 0	Te 125 37.4 s Z: 52, N: 73 188,951 0	Te 126 18.95 Z: 52, N: 74 190,933 0
Sb 117 2.8 h Z: 51, N: 66 173,939 0	Sb 118 5.5 s Z: 51, N: 67 175,955 0	Sb 119 38.5 h Z: 51, N: 68 177,971 0	Sb 120 3.76 d Z: 51, N: 69 179,987 0	Sb 121 57.3 Z: 51, N: 70 181,999 0	Sb 122 4.7 m Z: 51, N: 71 183,981 0	Sb 123 42.7 Z: 51, N: 72 185,963 0	Sb 124 70 m Z: 51, N: 73 187,945 0	Sb 125 2.77 s Z: 51, N: 74 189,927 0

Abb. 5 Ausschnitt aus der Nuklidkarte

Ohne Verunreinigung von ^{125}I lässt sich ^{124}I über die Routen $^{123}\text{Te}(d,n)^{124}\text{I}$ [74] und $^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$ produzieren. Erste Untersuchungen der $^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$ -Reaktion ließen niedrige Ausbeuten an ^{124}I vermuten [75,60], jedoch handelte es sich dabei um Untersuchungen zur Ausbeute von ^{123}I . Spätere Untersuchungen zur Anregungsfunktion der $^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$ -Reaktion [76,77] konnten zeigen, daß die Ausbeute an ^{124}I höher ist, als nach den ersten Untersuchungen zu erwarten war. Dieser Fall zeigt die Wichtigkeit genauer Kerndatenmessungen zur Beurteilung einer möglichen Produktionsroute. Zur Zeit wird die $^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$ -Reaktion, die an einem kleinen Zyklotron durchgeführt werden kann, an verschiedenen Instituten routinemäßig zur Produktion von ^{124}I eingesetzt [76,78-80]. Die $^{123}\text{Te}(d,n)^{124}\text{I}$ -Reaktion liefert ^{124}I in einer geringen Ausbeute und mit einem großen Anteil ^{123}I . Läßt man das bestrahlte Target jedoch für einige Tage liegen so zerfällt ein Großteil der ^{123}I -Aktivität.

Ein Blick auf die Nuklidkarte (Abb. 5) läßt auch für ^{124}I eventuell neue Produktionsrouten erkennen [cf. 81]. Bestrahlung von angereichertem ^{125}Te könnte ^{124}I in höherer Ausbeute und mit geringerer Verunreinigung durch ^{125}I als über die $^{124}\text{Te}(d,2n)$ -Reaktion liefern. Auch eine Produktion aus angereichertem ^{126}Te ist denkbar, allerdings ist hier mit Verunreinigungen durch ^{125}I und ^{126}I zu rechnen. Beide Reaktionen sind aber leider nicht an einen kleinen Zyklotron durchführbar, da mit höheren Energien zu rechnen ist. Dieser Umstand schränkt die Einsatzmöglichkeiten deutlich ein.

2 Problemstellung

Für die quantitative Bestimmung iodmarkierter Verbindungen mittels PET bieten sich die Nuklide ^{120g}I und ^{124}I an. Die Zerfallseigenschaften von ^{120g}I , insbesondere die Intensität der Positronenemission, sind in der Literatur nicht eindeutig beschrieben. Daher sollen diese in der vorliegenden Arbeit ermittelt werden. Um eine effiziente Produktion von ^{120g}I und ^{124}I zu gewährleisten, sollen in erster Linie neue Produktionsrouten erforscht werden. Da das verwendete Targetmaterial sehr kostbar ist, müssen neue Bestrahlungs- und Abtrennungstechniken untersucht werden, welche die Verluste möglichst gering halten sollen. Diese Arbeit gliedert sich daher in folgende Abschnitte:

1. Bestimmung der Kernreaktionsdaten verschiedener Produktionsrouten zur Darstellung von ^{120g}I und ^{124}I an einem Zyklotron.
2. Berechnung verschiedener Anregungsfunktionen zur Bildung von ^{120g}I und ^{124}I mit den Kernmodellrechnungen STAPRE und ALICE-IPPE; Vergleich mit den gemessenen Daten.
3. Bestimmung des Positronenanteils beim Zerfall von ^{120g}I mittels Röntgen- und γ -Spektrometrie.
4. Entwicklung einer neuen Apparatur zur chemischen Abtrennung des Radioiods aus dem bestrahlten Targetmaterial.
5. Medizinisch-physikalische Beurteilung der Nuklide durch PET-Phantommessungen.
6. Qualitätskontrolle des abgetrennten Iods mittels Synthese einiger Radiopharmaka.

Zu 1. Zur Produktion von ^{120g}I bieten sich an einem kleinen Zyklotron die Kernreaktionen $^{120}\text{Te}(p,n)^{120m,g}\text{I}$ und $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120m,g}\text{I}$ an hoch angereichertem ^{120}Te an. Im Rahmen dieser Arbeit sollen die Anregungsfunktionen beider Reaktionen untersucht und bezüglich der ^{120g}I -Produktion mit der bekannten $^{122}\text{Te}(p,3n)^{120m,g}\text{I}$ -Reaktion an hoch angereichertem ^{122}Te verglichen werden. Aus den so gewonnenen Daten soll dann die optimale Produktionsroute hinsichtlich Ausbeute, Nuklid- und Isomerenreinheit bestimmt werden.

Der Positronenstrahler ^{124}I wird routinemäßig über die Reaktionen $^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$ und $^{124}\text{Te}(d,2n)^{124}\text{I}$ produziert (s. Einleitung). Für Einrichtungen mit einem Zyklotron mittlerer Energie wären aber auch die Reaktionen $^{125}\text{Te}(p,2n)^{124}\text{I}$ und $^{126}\text{Te}(p,3n)^{124}\text{I}$ denkbar. Beide Reaktionen versprechen niedrigere Targetkosten und höhere Ausbeuten an ^{124}I , allerdings auch eine Kontamination mit ^{125}I und ^{126}I . In dieser Arbeit soll die Reaktion $^{125}\text{Te}(p,2n)^{124}\text{I}$ im Hinblick auf Ausbeute und radiochemische Reinheit untersucht werden.

Zu 2. Zur Untersuchung von Reaktionsmechanismen werden oft Kernmodellrechnungen durchgeführt. Daher sollen die gemessenen nuklearen Daten zusätzlich mit Werten aus Kernmodellrechnungen verglichen werden. Für die Berechnungen der Niederenergiereaktionen an hoch angereichertem ^{120}Te soll das statistische Modell STAPRE verwendet werden. Von besonderem Interesse hierbei ist die Berechnung des Isomerenverhältnisses $^{120\text{m}}\text{I}/^{120\text{g}}\text{I}$. Die Mittelenergiereaktionen an hoch angereichertem ^{125}Te sollen mit dem Hybridmodell ALICE-IPPE berechnet werden.

Zu 3. Der Positronenanteil beim Zerfall des $^{120\text{g}}\text{I}$ wird in der Literatur mit 39 – 81 % angegeben. Für quantitative medizinische Untersuchungen ist der Anteil der Positronen allerdings von entscheidender Bedeutung. Die Ursache für die Ungenauigkeit der Literaturwerte liegt darin begründet, daß für die Zerfallsstudien an $^{120\text{g}}\text{I}$ bisher nur die Hochenergiereaktion $^{127}\text{I}(p,8n)^{120}\text{Xe} \xrightarrow[40\text{min}]{\beta^+, EC} ^{120\text{g}}\text{I}$ oder verschiedene Schwerionenreaktionen verwendet wurden. In allen Fällen lag nach Ende der Bestrahlung eine Mischung verschiedener Iodisotope vor. Zur Bestimmung des Positronenanteils soll die $^{120}\text{Te}(p,n)^{120\text{m,g}}\text{I}$ -Reaktion herangezogen werden, da hier eine hohe Nuklid- und Isomerenreinheit zu erwarten ist. Neben der γ -Spektrometrie soll zusätzlich die Röntgenspektrometrie herangezogen werden.

Zu 4. Zur Abtrennung des Radioiods vom bestrahlten TeO_2 -Target wird i. A. die trockene Destillation benutzt. Hierbei wird das TeO_2 über den Schmelzpunkt erhitzt und das Iod mit einem Trägergasstrom in eine Vorlage transportiert. Um die Verluste an Iod zu minimieren sollen verschiedene Parameter wie Temperatur, Ausheizmethode (Induktionsheizung vs. Röhrenofen), Fluß und Zusammensetzung des Träger-

gases und die Größe der Ausheizröhre untersucht werden. Die dabei gewonnenen Erkenntnisse sollen dann in den Bau einer neuen Destillationsapparatur fließen.

Zu 5. Die medizinisch-physikalische Beurteilung neuer Radionuklide erfolgt durch Phantommessungen. Dabei werden Hohlkörper mit Lösungen der zu untersuchenden Nuklide gefüllt. Mit diesen Messungen soll der Einfluß der Positronenenergie von ^{120g}I auf die Auflösung von PET-Aufnahmen untersucht werden und mit Standardnukliden verglichen werden. Ein weiteres Untersuchungsziel ist der Einfluß anderer Iodnuklide, die bei der Produktion von ^{120g}I entstehen, auf die PET-Aufnahmen.

Zu 6. Die Qualität des produzierten Radioiods soll anhand der Markierung von 4-Methoxy-N-methylbenzamid und Methyltyrosin untersucht werden. Diese Markierungen werden mit ^{123}I und ^{131}I routinemäßig am hiesigen Institut durchgeführt und sind gut dokumentiert.

3 Experimentelles

3.1 Reaktionsschwellen der untersuchten Reaktionen

Zur Berechnung der Reaktionsschwelle wurden der Q-Wert nach Gl. 2, die Schwellenenergie nach Gl. 3 und die Coulombschwelle nach Gl. 4 berechnet. Die benötigten Nuklidmassen sind der Literatur entnommen [82]. Durch Tunneleffekte kann die zu beobachtende Reaktionsschwelle deutlich unter der berechneten Reaktionsschwelle liegen.

Tabelle 3 Energetische Daten der untersuchten Reaktionen

Reaktion	Q-Wert [MeV]	Schwellenenergie [MeV]	Coulombschwelle [MeV]	Reaktionsschwelle [MeV]
$^{120}\text{Te}(p,n)^{120}\text{I}$	-6,40	6,45	10,52	16,97
$^{120}\text{Te}(p,2n)^{119}\text{I}$	-14,59	14,71	10,52	25,23
$^{120}\text{Te}(d,n)^{121}\text{I}$	+1,95	0	10,08	10,08
$^{120}\text{Te}(d,2n)^{120}\text{I}$	-8,62	8,77	10,08	18,84
$^{125}\text{Te}(p,n)^{125}\text{I}$	-0,97	0,97	10,40	11,37
$^{125}\text{Te}(p,2n)^{124}\text{I}$	-10,52	10,60	10,40	21,00
$^{125}\text{Te}(p,3n)^{123}\text{I}$	-18,02	18,17	10,40	28,57
$^{125}\text{Te}(p,4n)^{122}\text{I}$	-27,95	28,17	10,40	38,57
$^{125}\text{Te}(p,5n)^{121}\text{I}$	-35,80	36,09	10,40	46,49
$^{125}\text{Te}(p,6n)^{120}\text{I}$	-46,38	46,75	10,40	57,15
$^{125}\text{Te}(p,7n)^{119}\text{I}$	-54,57	55,01	10,40	65,41

3.2 Angereicherte Materialien

Für die Bestrahlungen wurden angereicherte Materialien von verschiedenen Lieferanten (CHEMGAS, Boulogne, Frankreich; euriso-top, Saint Aubin, Frankreich; CHEMOTRADE, Düsseldorf) bezogen. So wich die Isotopenzusammensetzung des Targetmaterials für Kerndatenmessungen manchmal von der Isotopenzusammensetzung für Produktionsbestrahlungen geringfügig ab. Bei allen Materialien betrug

der Anteil an Tellur mindestens 99,2 %. Keine Komponente der Verunreinigung hatte einen Anteil von $> 0,02$ %, bezogen auf die gesamte Menge. In Tabelle 4 sind alle verwendeten angereicherten Materialien mit ihrer Isotopenzusammensetzung des Tellurs aufgeführt.

Tabelle 4 Isotopenzusammensetzung verschieden angereicherter Materialien

Material	Isotopenanteil [%]							
	^{120}Te	^{122}Te	^{123}Te	^{124}Te	^{125}Te	^{126}Te	^{128}Te	^{130}Te
^{120}Te (1)	99,0	0,8	0,2	-	-	-	-	-
^{120}Te (2)	99,9	0,1	-	-	-	-	-	-
^{122}Te (1)	$< 0,05$	97,12	0,15	0,23	0,28	0,70	1,06	0,46
^{122}Te (2)	0,43	99,37	0,20	-	-	-	-	-
^{124}Te (1)	$< 0,01$	0,01	0,15	99,72	0,10	$< 0,01$	$< 0,01$	$< 0,01$
^{124}Te (2)	-	-	0,2	99,8	-	-	-	-
^{125}Te (1)	$< 0,02$	0,08	0,06	0,39	95,54	2,72	0,79	0,42
^{125}Te (2)	$< 0,1$	0,1	0,5	0,8	98,3	0,1	0,1	$< 0,1$

Aufgrund der hohen Materialkosten wurde auf eine eigene Analyse des hochangereicherten Materials verzichtet. Die Angaben in dieser Arbeit beziehen sich alle auf die Angaben der Lieferanten. Von den hergestellten Proben für die Kerndatenmessungen wurde ebenfalls keine Analyse durchgeführt. Für die Auswertung wurde angenommen, daß die abgeschiedene Schicht zu 100 % aus elementarem Tellur besteht.

3.3 Probenpräparation für Kerndatenmessungen

Dünne Schichten des hoch angereicherten Tellurs wurden durch elektrolytische Abscheidung auf Titanfolien gewonnen. Zur Herstellung der Elektrolytlösung [83] wurden 15-40 mg angereichertes ^{120}Te oder ^{125}Te in 1-2 mL Königswasser gelöst und zur Trockene eingengt. Der Rückstand wurde dreimal mit jeweils 0,5 mL konz.

Salzsäure aufgenommen und fast bis zur Trockene eingengt. Auf diese Weise erhielt man einen hochviskosen gelben Rückstand, der unter Erwärmung in 1 mL Ethanol gelöst wurde. Die ethanolische Tellurlösung wurde dann gerade mit soviel Benzol (ca. 0,5 mL) versetzt, daß das Auftreten einer Benzol/Ethanol-Phasengrenze vermieden wurde. Der Benzolzusatz bewirkte eine Erniedrigung der Mindestkonzentration von Tellur, unter der sich das Tellur nicht mehr als festhaftende Schicht abscheiden ließ. Ein Zusatz von Toluol zeigte ähnliche Eigenschaften, war aber nicht ganz so effektiv.

Die elektrolytische Abscheidung wurde in einer Elektrolysezelle (Abb. 6) durchgeführt, welche eine Kupferkathode und eine rotierende Platinanode enthält [84]. Auf die Kupferkathode wurde eine 20 µm Titanfolie (Durchmesser 13 - 15 mm) gelegt, die vorher in siedendem Chloroform entfettet, 2 Minuten in konz. Salzsäure angeätzt und in Ethanol gespült wurde. Durch die Verwendung von Silikonringen und Glaszylinder verschiedener Durchmesser, konnten Tellurschichten von 7 mm bis 13 mm Durchmesser erzeugt werden.

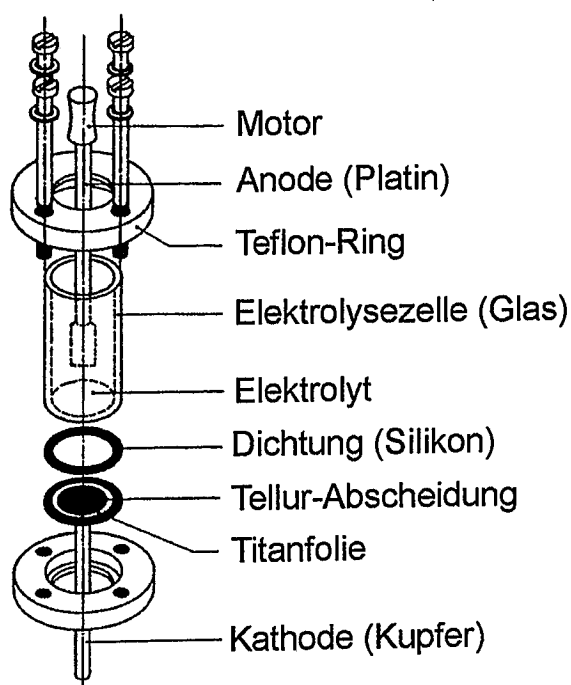


Abb. 6 Schematische Darstellung der Elektrolysezelle [84]

Die elektrolytische Abscheidung wurde mit einem konstanten Strom von 1 mA und einer Spannung zwischen 1,8 und 2,8 V durchgeführt. Auf diese Weise wurden Abscheideraten von ca. 1 mg Tellur pro Stunde realisiert. Die Elektrolysedauer lag zwischen 1-3 Stunden.

Nach der elektrolytischen Abscheidung wurde die Tellurlösung mit einer Spritze entnommen und für weitere Abscheidung aufbewahrt. Die frische Tellurschicht wurde fünfmal mit jeweils 1 mL salzsaurem Ethanol in der Zelle gespült und an der Luft getrocknet. Die Waschlösung wurde zur Rückgewinnung des Tellurs gesammelt.

Die Qualitätskontrolle und die Bestimmung der Schichtdicke erfolgte mit einem Mikroskop. Die Tellurschichten hatten eine Dicke von ca. 20 μm und waren von dunkelgrauer bis schwarzer Farbe mit gleichmäßiger Schichtstruktur. Zum Schutz wurde die Tellurschicht mit einem dünnen Film (ca. 40 $\mu\text{g cm}^{-2}$) von Levapren (Polyvinylacetat, Bayer) überzogen. Zusätzlichen Schutz lieferte eine 10 μm dicke überstehende Aluminiumfolie, die auf den trockenen Film gelegt und nach hinten umgebogen wurde.

3.4 Aufbau eines Folienstapels

Die Bestrahlungsexperimente erfolgten nach der bekannten Folienstapel-Technik. Ein solcher Folienstapel (Abb. 7) enthält neben den eigentlichen Tellurproben auch Monitorfolien zur Fluß- und Energiebestimmung und Absorberfolien zur Energiede-gradierung. Der Energieverlust von Protonen in einem Stack ist in Abb. 8 graphisch dargestellt. Bei den Absorberfolien handelt es sich oft um sehr dicke Folien mit einer Stärke von 1 mm und mehr, die immer wieder eingesetzt werden können. Der Aufbau eines solchen Folienstapels wurde mit dem institutseigenem Programm STACK berechnet. Bei diesem Programm handelt es sich um ein Visual Basic Programm auf Basis einer modifizierten Bethe-Bloch-Gleichung. Zur Ausführung des Programms wird die Tabellenkalkulation Microsoft Excel benötigt. Das Ergebnis einer solchen Berechnung ist in Abb. 9 gezeigt.

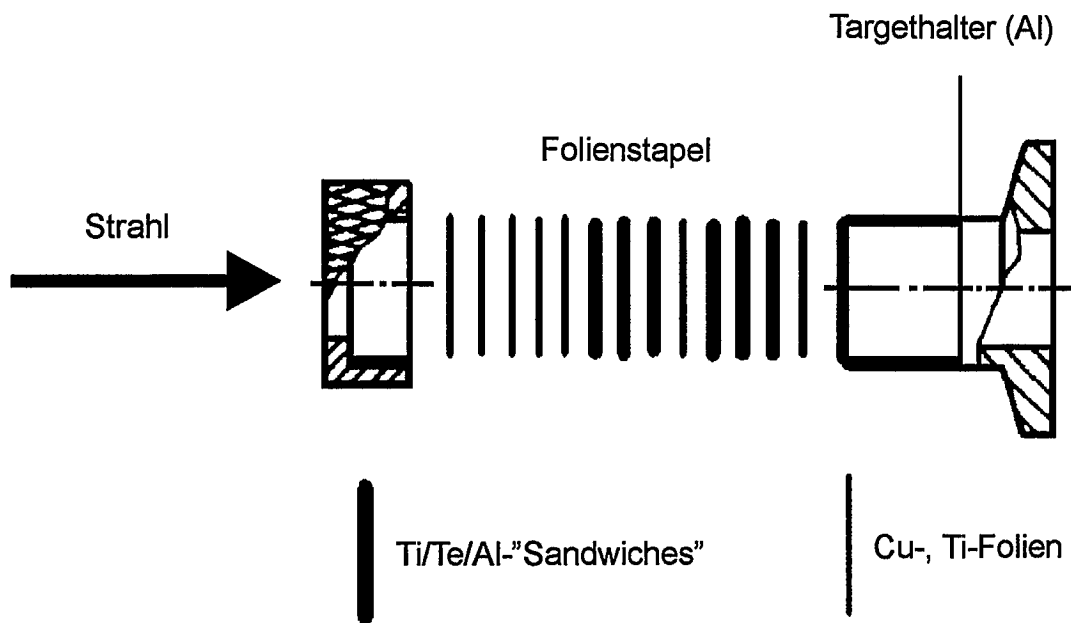


Abb. 7 Schematische Darstellung eines Targethalters für Bestrahlungen am CV 28 mit einem Folienstapel

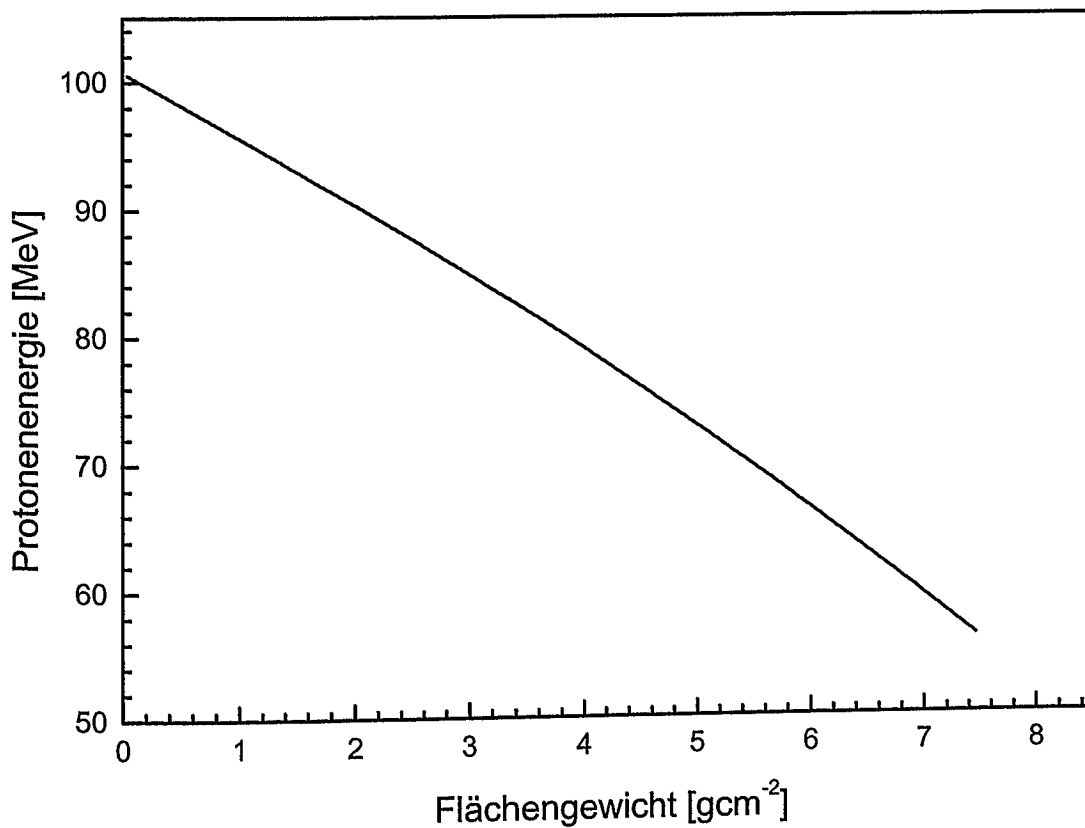


Abb. 8 Energieabnahme innerhalb eines Stacks

Bestrahlungsdaten

Stack	5	Bestrahlungszeit [min]		10							
Projekttil-Daten											
Name	O-zahl Projekttil	Molmasse									
H	1	1,0079									
		Anfangsenergie	Genauigkeit	Folienzahl							
		100,54	100	50							
Target-Daten											
Target	O-Zahl Target	Molmasse	Gewicht	Durchmesser	Folienbeschreibung		Flächengewicht	mittlere Energie	Eintrittsenergie	Austrittsenergie	
		[g/mol]	[g]	[mm]			[g/cm²]				
	otrg	utrg	weight	dfolie			flweight	[MeV]	[MeV]		
									energy_in	energy_out	
Al	13	26,98154	0,0075	19,0	125Te-15	10 µm	2,645E-03	100,53	100,54	100,52	
125Te	52	124,904	0,00201	10,7			2,235E-03	100,52	100,52	100,52	
Ti	22	47,9	0,01786	15,0			1,011E-02	100,49	100,52	100,46	
Al	13	26,98154	0,1894	19,0		Al-16	250 µm	6,680E-02	100,27	100,46	100,07
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-1	125 µm	1,191E-01	99,78	100,07	99,48	
Cu	29	63,546	3,5895	19,0	T4	1400 µm	1,266E+00	96,25	99,48	93,01	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-2	125 µm	1,191E-01	92,70	93,01	92,39	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-8	125 µm	1,191E-01	92,08	92,39	91,76	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-10	125 µm	1,191E-01	91,45	91,76	91,13	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-12	125 µm	1,191E-01	90,82	91,13	90,50	
Al	13	26,98154	0,0075	19,0		10 µm	2,645E-03	90,49	90,50	90,48	
125Te	52	124,904	0,00207	10,7	125Te-16		2,302E-03	90,48	90,48	90,47	
Ti	22	47,9	0,01786	15,0			20 µm	1,011E-02	90,44	90,47	90,42
Al	13	26,98154	0,1894	19,0		Al-26	250 µm	6,680E-02	90,20	90,42	89,99
Cu	29	63,546	0,3377	19,0		Cu-13	125 µm	1,191E-01	89,68	89,99	89,36
Cu	29	63,546	3,2222	19,0	T9	1200 µm	1,136E+00	86,23	89,36	83,09	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-14	125 µm	1,191E-01	82,76	83,09	82,42	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-15	125 µm	1,191E-01	82,08	82,42	81,74	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-16	125 µm	1,191E-01	81,40	81,74	81,06	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-17	125 µm	1,191E-01	80,71	81,06	80,37	
Al	13	26,98154	0,0075	19,0		10 µm	2,645E-03	80,36	80,37	80,35	
125Te	52	124,904	0,00203	10,7	125Te-17		2,258E-03	80,35	80,35	80,34	
Ti	22	47,9	0,01786	15,0			20 µm	1,011E-02	80,31	80,34	80,28
Al	13	26,98154	0,1894	19,0		Al-28	250 µm	6,680E-02	80,05	80,28	79,82
Cu	29	63,546	0,3377	19,0		Cu-18	125 µm	1,191E-01	79,47	79,82	79,13
Cu	29	63,546	3,2222	19,0	T11	1200 µm	1,136E+00	75,70	79,13	72,27	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-19	125 µm	1,191E-01	71,89	72,27	71,52	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-20	125 µm	1,191E-01	71,15	71,52	70,77	
Al	13	26,98154	0,1894	19,0	Al-30	250 µm	6,680E-02	70,52	70,77	70,27	
Al	13	26,98154	0,0075	19,0		10 µm	2,645E-03	70,26	70,27	70,25	
125Te	52	124,904	0,00256	10,7	125Te-18		2,847E-03	70,24	70,25	70,23	
Ti	22	47,9	0,01786	15,0			20 µm	1,011E-02	70,20	70,23	70,16
Al	13	26,98154	0,1894	19,0		Al-29	250 µm	6,680E-02	69,91	70,16	69,66
Cu	29	63,546	0,3377	19,0		Cu-21	125 µm	1,191E-01	69,28	69,66	68,89
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-22	125 µm	1,191E-01	68,51	68,89	68,12	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-23	125 µm	1,191E-01	67,73	68,12	67,34	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-24	125 µm	1,191E-01	66,95	67,34	66,56	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-25	125 µm	1,191E-01	66,16	66,56	65,77	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-26	125 µm	1,191E-01	65,37	65,77	64,97	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-27	125 µm	1,191E-01	64,57	64,97	64,16	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-28	125 µm	1,191E-01	63,76	64,16	63,35	
Cu	29	63,546	0,3377	19,0	Cu-29	125 µm	1,191E-01	62,94	63,35	62,53	
Cu	29	63,546	0,3377	10,9	Cu-30	125 µm	3,619E-01	61,26	62,53	59,99	
Cu	29	63,546	0,3377	13,0	Cu-31	125 µm	2,544E-01	59,07	59,99	58,16	
Al	13	26,98154	0,1894	19,0	Al-31	250 µm	6,680E-02	57,86	58,16	57,57	
Al	13	26,98154	0,0075	19,0		10 µm	2,645E-03	57,56	57,57	57,55	
125Te	52	124,904	0,00241	10,7	125Te-19		2,680E-03	57,54	57,55	57,53	
Ti	22	47,9	0,01786	15,0			20 µm	1,011E-02	57,49	57,53	57,46
Al	13	26,98154	0,1894	19,0		Al-27	250 µm	6,680E-02	57,16	57,46	56,87
Cu	29	63,546	0,3377	19,0		Cu-32	125 µm	1,191E-01	56,42	56,87	55,98

Abb. 9 Ergebnis der Stackberechnung mit dem Programm STACK für eine Bestrahlung am SSC des National Accelerator Centre, Faure, Südafrika mit einer Einschußenergie von 100 MeV.

3.5 Durchführung der Bestrahlungsexperimente für Kerndatenmessungen

Bestrahlungen mit Protonenenergien bis 21 MeV und Deuteronenenergien bis 14 MeV erfolgten am Kompaktzyklotron CV 28 [cf. 85] des Forschungszentrums Jülich GmbH (FZJ). Die Bestrahlungen wurden mit nominellen Strömen von 100 nA und Bestrahlungszeiten von 20 bis 60 min durchgeführt. Der Folienstapel wurde auf einem Targethalter aus Aluminium (Abb. 10) befestigt. Aluminium ist besonders geeignet, da es die auftretende Wärme gut abführt und bei den Bestrahlungen kaum aktiviert wird. Der Targethalter ist von innen hohl und wird während der Bestrahlung mit Wasser gekühlt (2π -Kühlung). Bei den Bestrahlungen handelte es sich um externe Bestrahlungen.

Der Projekttilstrahl wurde mit Hilfe von Scannern eingestellt. Vor jedem Bestrahlungsexperiment wurde ein Brandfleck auf Papier hergestellt, um die genaue Position des Strahls auf dem Target zu kontrollieren.

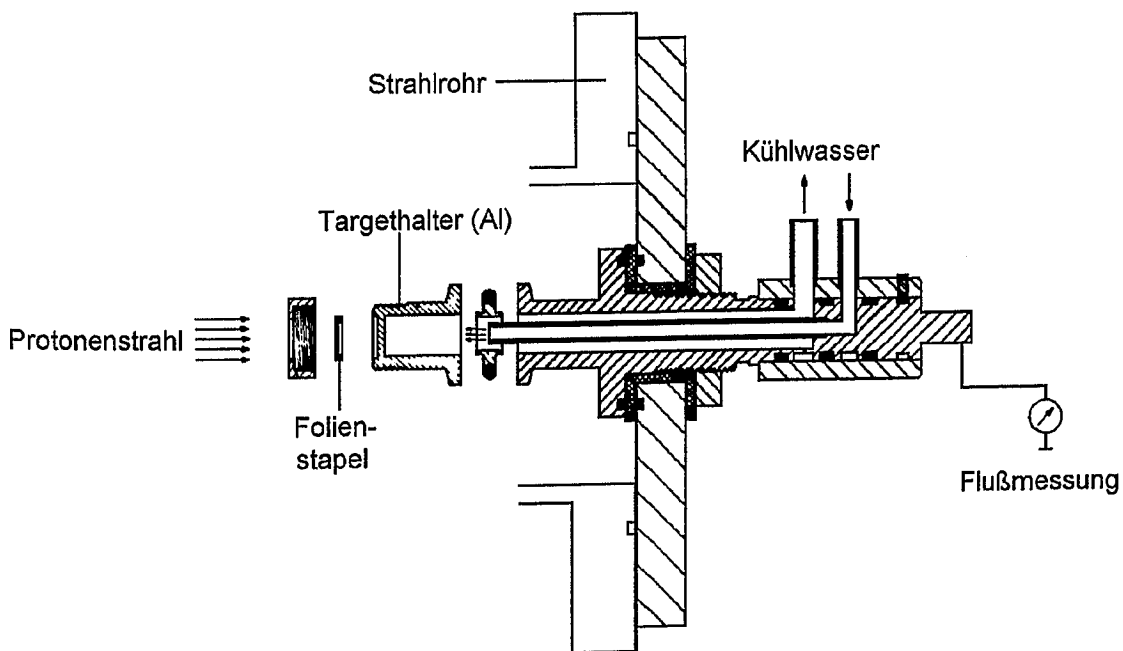


Abb. 10 Schematische Darstellung der Bestrahlungseinrichtung am CV 28

Bestrahlungen mit Protonenenergien zwischen 20 und 45 MeV wurden am Injektor von COSY des Forschungszentrums Jülich GmbH durchgeführt [86]. Im Gegensatz zu den Bestrahlungen am CV 28 fanden am Injektor interne Bestrahlung statt, d. h. der Targethalter wurde über ein Schleusensystem ins Innere des Zyklotrons eingeführt. Eine Kühlung des Folienstapels während der Bestrahlung war nicht möglich. Wie beim CV 28 wurde mit nominellen Strömen von 100 nA bestrahlt. Die Bestrahlungszeiten betrugen jeweils 30 min.

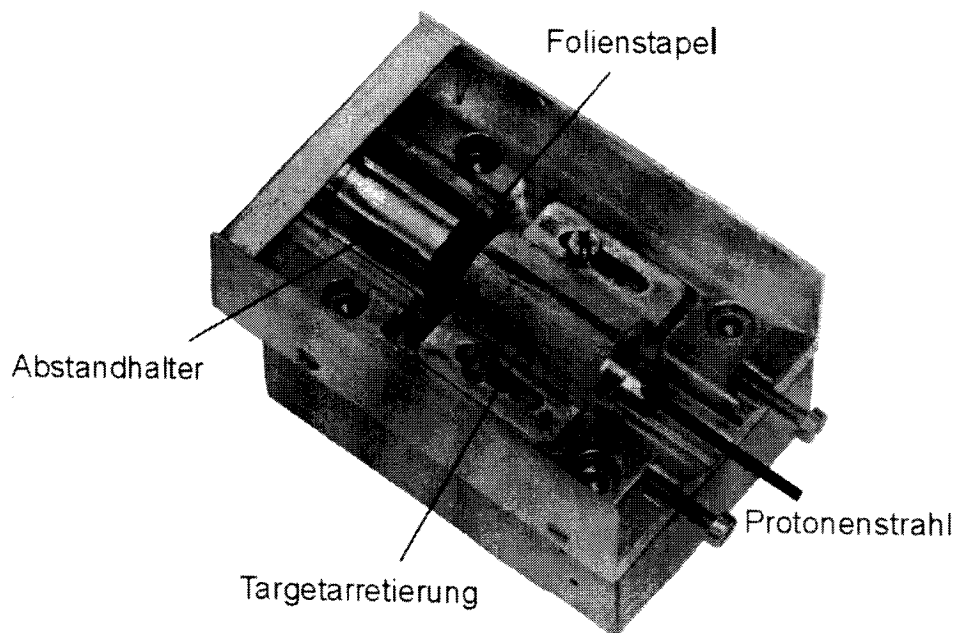


Abb. 11 Targethalter für Bestrahlungsexperimente am Injektor von COSY [86]

Protonenbestrahlungen im Energiebereich von 45-70 MeV wurden am Paul-Scherrer-Institut (PSI) in Villigen (Schweiz) und am Separated-Sector-Cyclotron (SSC) des National Accelerator Centre (NAC) in Faure (Südafrika) durchgeführt.

Bestrahlungsexperimente im Energiebereich 70-100 MeV wurden nur am SSC des National Accelerator Centre durchgeführt. Die Bestrahlungszeiten betrugen 10 bzw. 60 Minuten. Die Strahleinstellung erfolgte über ein Fokussier-Schirm mit einer BeO-Scheibe. Dieser Fokussier-Schirm mit den gleichen Maßen wie der Targethalter wurde vor dem Experiment im Strahlrohr an der gleichen Position wie später der Targethalter angebracht. Bei niedrigen Strahlströmen leuchtete die BeO-Scheibe auf, was über eine Kamera beobachtet werden konnte. Auf diese Weise wurde der Strahl optisch justiert.

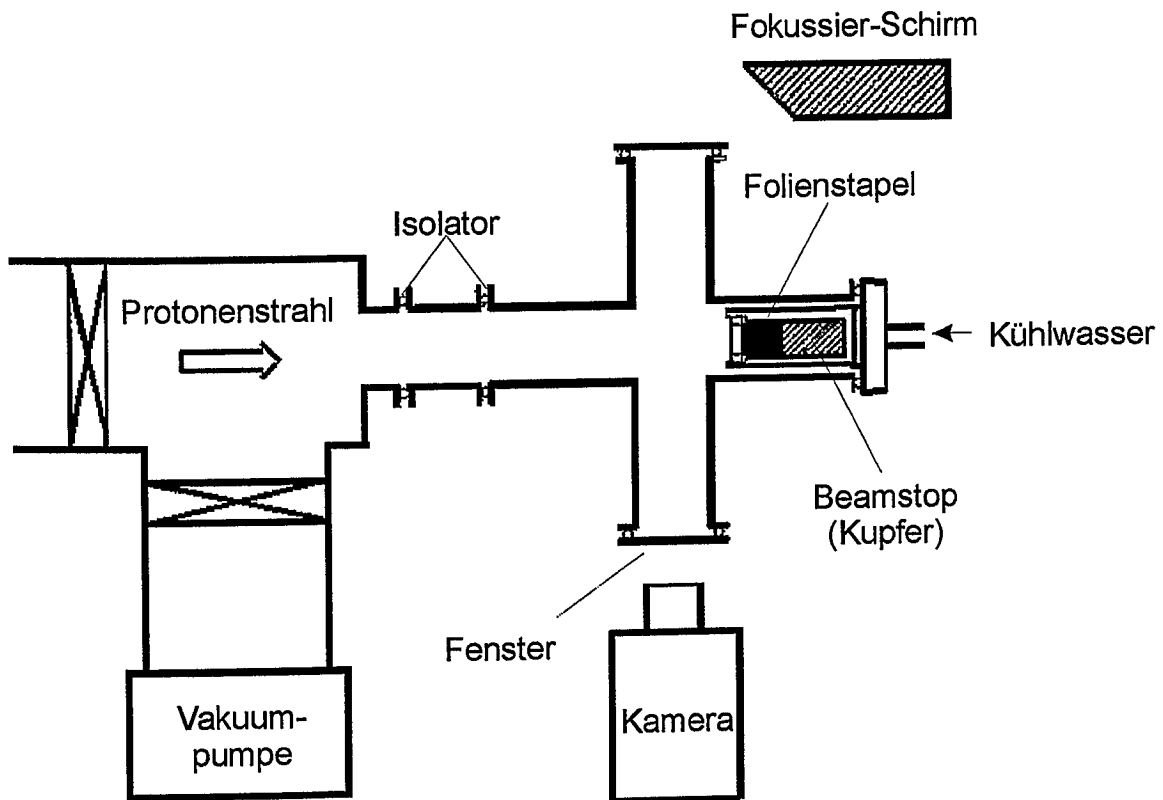


Abb. 12 Schematische Darstellung der Bestrahlungseinrichtung am National Accelerator Centre, Faure, Südafrika

3.6 Energiebestimmung

Zur Energiebestimmung der Projektile gibt es viele Möglichkeiten. So können Analysenmagnete in die Beamline eingebaut werden, welche die Energie der Projektile durch ihre Ablenkung messen können. Eine andere Möglichkeit ist der Einsatz von Time-of-Flight-Spektrometern, wie am SSC des NAC. Am CV 28 mißt man die räumliche und zeitliche Differenz der einzelnen Projektilpakete in der Beamline [87]. Während die räumliche Differenz unabhängig von der Energie und der Teilchensorte ist, verhält sich die zeitliche Differenz reziprok zur Beschleunigungsfrequenz, welche leicht zu messen ist.

Neben der Energiemessung am Zyklotron selber, besteht auch die Möglichkeit die Energie über Monitorfolien nach Gl. 9 zu messen. Die Abweichung der Energiemessung am Zyklotron selber von der Energiemessung über Monitorfolien betrug maximal 0,2 MeV.

3.7 Bestimmung der Radioaktivität

Die Aktivitätsbestimmung der bestrahlten Proben erfolgte mittels γ - und Röntgenspektrometrie. Für die γ -Spektrometrie standen mehrere Reinstgermanium-Detektoren der Firma EG & G ORTEC im Institut zur Verfügung. Diese waren über 4 K oder 16 K Vielkanal-Impulshöhenanalysatoren (MCB) an einen PC angeschlossen. Als Meß- und Auswerte-Software diente GAMMA-VISION von EG & G ORTEC. Die Software erlaubt es nach einer Energiekalibrierung jedem Meßkanal eine bestimmte γ -Energie zuzuordnen. Der Abstand der Proben zum Detektor wurde so gewählt, daß die Totzeit bei den Messungen immer unter 7 % lag. Reproduzierbare Meßabstände wurden durch Abstandhalter aus Plexiglas mit festen Einkerbungen erreicht. Der Abstand betrug bei allen Messungen mindestens 10 cm.

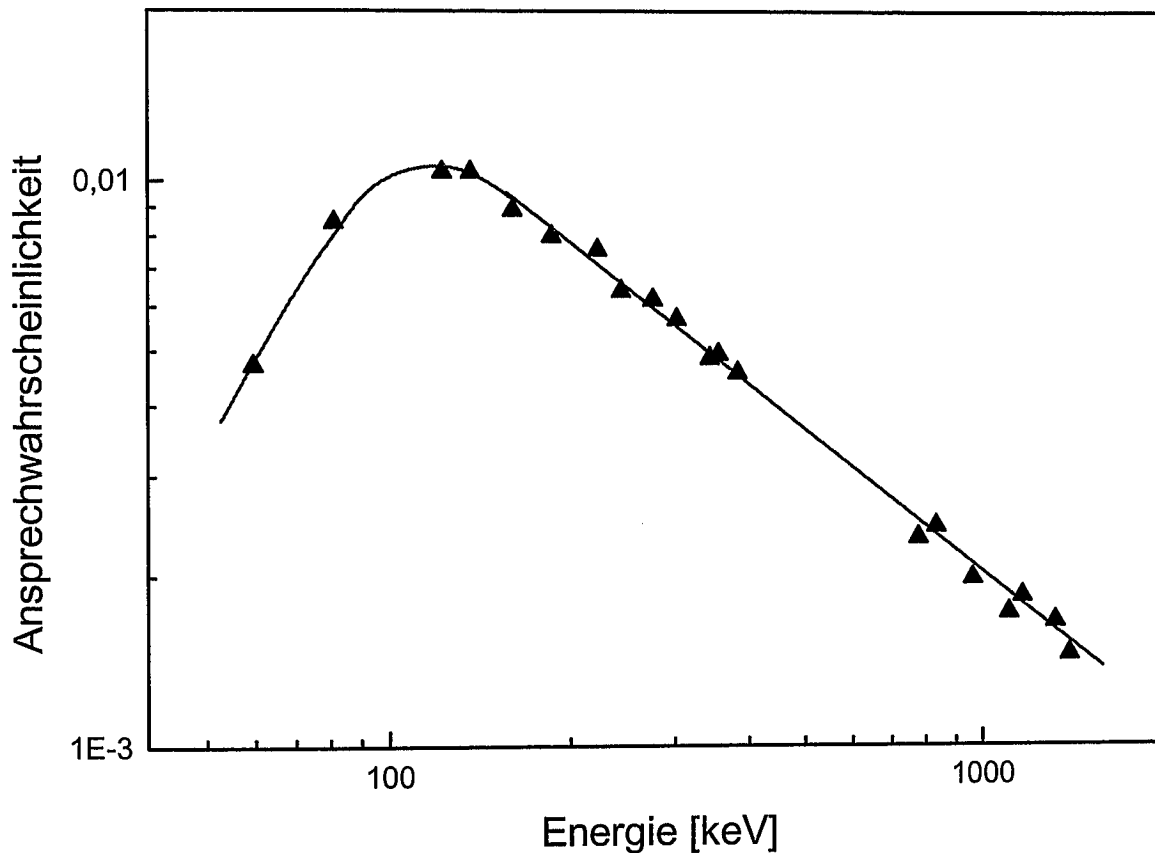


Abb. 13 Ansprechwahrscheinlichkeit eines Reinstgermanium-Detektors zur γ -Spektrometrie. Der Probenabstand betrug 10 cm.

Zur Röntgenspektrometrie stand ein Si(Li)-Detektor zur Verfügung. Obwohl die Ansprechwahrscheinlichkeit eines Si(Li)-Detektors (Abb. 14) geringer ist als die eines Reinstgermanium-Detektors, benutzt man sie zur Röntgenspektrometrie, da sie eine höhere Energieauflösung im Energiebereich bis 100 keV besitzen. Die Meßelektronik war identisch mit der, die bei der γ -Spektrometrie verwendet wurde. Die Auswertung der Spektren erfolgte ebenfalls mit GAMMA-VISION.

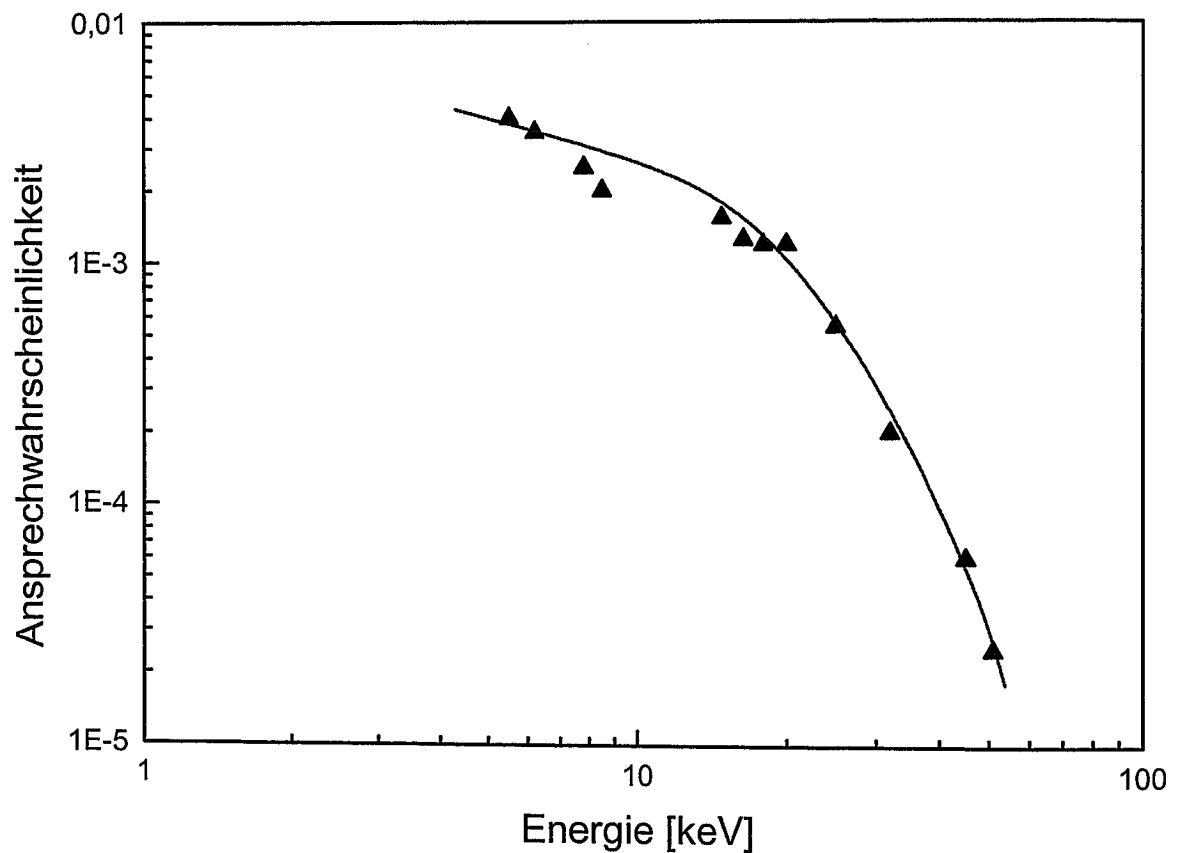


Abb. 14 Ansprechtwahrscheinlichkeit eines Si(Li)-Detektors zur Röntgenspektrometrie.

Ein Problem bei der Aktivitätsmessung war die Interferenz verschiedener Nuklide und Isomere mit gleichen Röntgen- bzw. γ -Linien (Tabelle 5). Soweit wie möglich wurde auf Linien zurückgegriffen, die nur bei einem Nuklid oder Isomer vorkommen. War das nicht möglich, so mußte der störenden Anteil subtrahiert werden. Lag das störende Nuklid oder Isomer im deutlichen Überschuß vor, dann war die Aktivitätsmessung mit einer hohen Ungenauigkeit behaftet.

Tabelle 5 Zerfallsdaten der wichtigsten Nuklide, die in dieser Arbeit untersucht wurden [42]

Nuklid	Halbwertszeit	γ-Energie [keV]	I _γ [%]
Produkte der unterschiedlichen Kernreaktionen			
¹¹⁹ I	19,1 min	257,5	86,7
^{120g} I	81 min	560,4	73,0
		601,1	5,8
		614,0	0,66
		641,1	9,1
		1523,0	11,2
^{120m} I	53 min	560,4	100
		601,1	87
		614,7	67
		1345,9	18,9
¹²¹ I	2,12 h	212,2	84,3
¹²² I	3,63 min	564,1	18
¹²³ I	13,27 h	158,97	83,3
¹²⁴ I	4,18 d	602,7	60,5
		1691,0	10,4
¹²⁵ I	59,4 d	35,49	6,68
Produkte der Monitorreaktionen			
⁴⁸ V	15,97 d	983,52	100
		1312,1	97,5
⁴³ Sc	3,89 h	372,8	22,5
⁴⁷ Sc	3,35 d	159,38	68,3
⁶² Zn	9,26 h	548,35	15,3
		596,56	26
⁶³ Zn	38,47 min	669,62	8,2
		962,06	6,5
²² Na	2,61 y	1274,53	99,94
²⁴ Na	14,96 h	1369	99,94

3.8 Energiekalibrierung und Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors

Die Energiekalibrierung und die Bestimmung der Detektoransprechwahrscheinlichkeit erfolgten mit Standardpräparaten der Firma Amersham-Buchler und der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB), Braunschweig. Ermittelt wurden die Ansprechwahrscheinlichkeiten verschiedener Reinstgermanium-Detektoren jeweils für die Abstände 10, 20, 30 und 50 cm. Für die Ansprechwahrscheinlichkeit eines Detektors ε bei einem bestimmten Abstand gilt:

$$\varepsilon = \frac{F_P}{A \cdot I_\gamma \cdot t} \quad (13)$$

mit F_P = Peakfläche

A = absolute Aktivität des Standards

I_γ = Intensität der γ - Linie

t = korrigierte Meßzeit

Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Röntgendetektors wurde nur für einen Abstand von 2 cm bestimmt. Um eine Absorption der Röntgenstrahlung zu vermeiden, wurde die Probe mit Klebeband auf einen Abstandhalter mit 2 cm Höhe befestigt. In der Mitte des Abstandhalters befand sich eine Öffnung, so daß die Röntgenstrahlung ohne Absorption auf die Detektoroberfläche gelangte. Dies ist besonders wichtig, da die Absorption von Röntgenstrahlung durch Materie wesentlich stärker ist als von γ -Strahlung.

3.9 Aktivitätsbestimmungen

Für die Berechnung der Wirkungsquerschnitte, der Projektilflüsse und Projektilenergien werden die absoluten Aktivitäten der einzelnen Nuklide bei Bestrahlungsende benötigt. Die Aktivitätsbestimmung erfolgt nach Gl. 14.

$$A_0 = \frac{F_P}{\varepsilon \cdot I_\gamma \cdot t_M} \left(\frac{1}{e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t}} \right) \quad (14)$$

mit t_M = Meßzeit
 t = Zerfallszeit

Um zwei einzelne γ -Quanten getrennt detektieren zu können wird der Detektor immer wieder für einen kurzen Zeitraum abgeschaltet. Um diese *Totzeit* zu korrigieren wird diese von der Meßzeit abgezogen. Werden trotz der Totzeit des Detektors zwei γ -Quanten gleichzeitig detektiert, so spricht man von einer *Zufallskoinzidenz* (*random summing, pulse pile-up*). Diese Zufallskoinzidenz ist abhängig von der Gesamtaktivität und damit vom Abstand der Probe zum Detektor bzw. von der Totzeit. Daher wurden Totzeiten > 7% bei den Messungen vermieden.

Sendet ein Nuklid beim Zerfall mehrere γ -Quanten während der Meßphase des Detektors aus (*Kaskaden-Zerfall*), so werden diese gleichzeitig detektiert und man spricht von einer *echten Koinzidenz*. Die *echte Koinzidenz* nimmt mit größerem Abstand der Probe zum Detektor ab, ist aber von der Gesamtaktivität unabhängig.

Weitere Fehler bei der Aktivitätsmessung können durch Selbstabsorption der Strahlung in der Probe entstehen. Da aber nur mit sehr dünnen Proben gearbeitet wurde, kann dieser Fehler als vernachlässigbar klein angesehen werden. Bei der Messung von Proben mit einem größeren Volumen entsteht ebenfalls ein Fehler, da die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors für feste Abstände ermittelt wird. Auch dies trifft für die verwendeten dünnen Proben nicht zu.

Da bei kurzlebigen Nukliden ein beträchtlicher Teil der Kerne während der Messung zerfällt, muß dies bei der Auswertung berücksichtigt werden. Für die Zerfallszeit t gilt daher:

$$t = t_{EOB} + K \cdot t_M \quad (15)$$

$$\text{mit } K = \ln \left(\frac{\ln 2 \cdot \frac{t_M}{T_{1/2}}}{1 - 0.5^{\frac{t_M}{T_{1/2}}}} \right) \cdot \frac{1}{\ln 2 \cdot \frac{t_M}{T_{1/2}}} \quad (16)$$

t_{EOB} = Zeitspanne von Bestrahlungsende bis Beginn der Messung

Ist die Meßzeit t_M klein gegenüber der Halbwertszeit, so läuft K gegen 0,5.

3.10 Fehlerbetrachtung

Der Gesamtfehler bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte wurde aus der Summe der Fehlerquadrate der Einzelfehler berechnet. Diese Einzelfehler sind im folgenden ausführlicher beschrieben.

Projektilenergie und Projektilfluß

Alle Monitorfolien eines Stacks wurden aus einem größeren Stück Metallfolie gestanzt und gewogen. Folien, deren Masse von der mittleren Masse der Folien abwichen, wurden verworfen. Bei allen Monitorfolien eines Stacks gleichen Materials wurde mit der mittleren Folienmasse gerechnet. Der Wägefehler der Folien lag unter 1 % und kann daher bei der Flußberechnung vernachlässigt werden.

Die Eintrittsenergie der Projektile wurde mit einer Genauigkeit von ca. 0,2 MeV angenommen. Mit zunehmender Anzahl von Folien steigt die Ungenauigkeit der Projektilenergie an, so daß ein maximalen Energiefehler von 1,0 MeV angenommen wurde. Je nach Energiebereich einer Monitorreaktion kann ein Energieungenauigkeit von 1,0 MeV eine Fehler des Wirkungsquerschnitts von bis zu 30 % ausmachen. Daher

wurde für manche Energien nur eine Monitorreaktion herangezogen. Für die Berechnung der Wirkungsquerschnitte wurde eine Ungenauigkeit der Projektilflüsse von 10 % angenommen.

Targetmasse und Targetinhomogenität

Je nach Targetmaterial wurden Targets verschiedener Stärke hergestellt. Die Targetmasse wurde bestimmt, indem die Backingfolie vor und nach der Abscheidung des Targetmaterials gewogen wurde. Bei Abscheidungen von ca. 1,0 mg betrug der Wägefehler ca. 5 %. Zwei Wägevorgänge bedeuten daher ein mittlerer Fehler von 7 %. Bei stärkeren Abscheidungen wurde mit 3 % Fehler gerechnet.

Für die Bestrahlungen wurden nur Proben ausgewählt, die unter einem Stereomikroskop eine homogene Verteilung aufwiesen. Betrachtet man diese Abscheidungen aber unter einem stärkeren Mikroskop, so zeigen die Proben Bereiche mit und ohne Abscheidung. Da diese Bereiche aber relativ klein und zudem relativ gleichmäßig über die gesamte Fläche verteilt waren, wurde der Fehler durch Targetinhomogenität mit 5 % angesetzt.

Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors

Um die Ungenauigkeit bei der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors so klein wie möglich zu halten, wurden mehrere Eichpräparate, deren Aktivität sehr genau bekannt ist, verwendet. Als Fehler der Ansprechwahrscheinlichkeit wurde 5 % angenommen.

Peakflächenbestimmung

Der Fehler der Peakflächenbestimmung hängt direkt von der Anzahl der gemessenen Impulse ab. Daher wurde versucht möglichst Peakflächen von mehr als 10000 Impulsen zu erreichen. In Anbetracht der manchmal kurzen Halbwertszeiten und der Anzahl der nötigen Messungen in einer bestimmten Zeit war dies nicht immer möglich. Bei den Nukliden ^{121}I , und ^{124}I wurde ein Fehler von 5 % angenommen. Bei den Nukliden ^{125}I , ^{123}I , $^{120\text{m}}\text{I}$ und ^{119}I wurde ein Fehler von 10 % angenommen. Da $^{120\text{m}}\text{I}$ und $^{120\text{g}}\text{I}$ oftmals die gleichen γ -Linien besitzen, konnten geringe Aktivitäten von $^{120\text{m}}\text{I}$ erst nach Subtraktion der $^{120\text{g}}\text{I}$ -Aktivität berechnet werden. In diesem Fall wurde ein Fehler von 15 % für die $^{120\text{m}}\text{I}$ -Aktivität angenommen.

Tabelle 6 Fehlerquellen und ihre Größe

Fehlerquelle		Fehler
Monitorreaktion (Flußmessung)		10 %
Targetmasse		3 - 7 %
Targetinhomogenität		5 %
Detektoransprechwahrscheinlichkeit		5 %
Peakfläche	^{119}I	10 %
	$^{120\text{m}}\text{I}$	10 - 15 %
	$^{120\text{g}}\text{I}$	10 %
	^{121}I	5 %
	^{122}I	15 %
	^{123}I	10 %
	^{124}I	5 %
	^{125}I	10 %
Gesamtfehler		14 – 21 %
Energiefehler		0,2 – 1,0 MeV

3.11 Bestimmung des Positronenanteils beim Zerfall von $^{120\text{g}}\text{I}$

Für den Einsatz bei PET-Messungen ist es wichtig, den genauen Anteil der Positronenemission beim Zerfall von $^{120\text{g}}\text{I}$ zu kennen. Wie bei den Kernreaktionsdaten gibt es auch beim Positronenanteil keine zuverlässigen Angaben in der Literatur. Die Werte liegen zwischen 39 % und 81 %

Für die Bestimmung des Positronenanteils beim Zerfall von $^{120\text{g}}\text{I}$ war eine sehr reine Probe von $^{120\text{g}}\text{I}$ nötig. Zu diesem Zweck wurden Proben von 99,0 % angereichertem ^{120}Te auf Titanbacking, geschützt durch eine 10 μm Al-Folie, mit 15 MeV Protonen bei einem Fluß von 100 nA 30 Minuten lang bestrahlt. Eine zerstörungsfreie Messung, die bei der Bestimmung der Wirkungsquerschnitte angewendet wurde, war nicht möglich, da auch in der Titan- und Aluminiumfolie bei der Bestrahlung Positro-

nenstrahler entstehen. Nach der Bestrahlung wurde die Aluminium-Schutzfolie manuell entfernt und das Tellur in 8 mL Königswasser gelöst. Die Titanfolie ist gegenüber Königswasser inert und wurde nach dem Lösen des Tellurs entfernt. Zur Rückgewinnung des angereicherten ^{120}Te wurde die Lösung mit 20 mL Wasser verdünnt, das Tellur mit 25 %-iger Hydrazinlösung reduziert und mit Hilfe einer Zentrifuge abgetrennt. Nach der Zugabe von einigen mL konz. Ammoniaklösung, 0,2 mL 0,1 m NaI-Trägerlösung, 0,2 mL 0,2 m $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ -Lösung und 0,22 mL 0,1 m AgNO_3 -Lösung wurde der entstandene $^{120\text{g}}\text{I}$ -AgI-Niederschlag abfiltriert und getrocknet.

Die Bestimmung des Positronenanteils erfolgte mittels γ -Spektrometrie und Röntgenspektrometrie. Um eine vollständige Vernichtung der Positronen bei der γ -Spektrometrie zu gewährleisten wurde die $^{120\text{g}}\text{I}$ -AgI-Probe zwischen zwei Kupferplatten mit einer Stärke von je 4 mm platziert [88]. Bei festem Abstand zum Detektor wurden mehrere Messungen durchgeführt. Um die Messungen richtig auszuwerten mußte die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors für diese spezielle Meßgeometrie neu bestimmt werden. Zu diesem Zweck wurden mehrere Standards ebenfalls zwischen 4 mm dicke Kupferplatten positioniert und dann gemessen. Die Bestimmung der absoluten $^{120\text{g}}\text{I}$ -Aktivität erfolgte durch Auswertung der γ -Linie bei 1523 keV mit einer Intensität von 11,2 %

Die Genauigkeit der Bestimmung des Positronenanteils mittels γ -Spektrometrie hängt von der Genauigkeit der Literaturwerte für die Intensität der 1523 keV γ -Linie ab. Um den Positronenanteil unabhängig von der 1523 keV-Linie bestimmen zu können, wurden die $^{120\text{g}}\text{I}$ -AgI-Proben zusätzlich mittels Röntgenspektrometrie untersucht. Zerfällt der $^{120\text{g}}\text{I}$ -Kern durch einen EC-Zerfall in ^{120}Te , so emittiert der angeregte ^{120}Te -Kern Röntgenstrahlung. Durch Auswertung der K_α und K_β -Strahlung im Röntgenspektrum von Tellur, deren Intensitäten mit hoher Genauigkeit bekannt sind [42], konnte die Anzahl der EC-Zerfälle zu einer bestimmten Zeit t_0 berechnet werden. Die Anzahl der Positronenzerfälle von $^{120\text{g}}\text{I}$ zur Zeit t_0 ergaben sich aus der Auswertung der 511 keV-Linie bei der γ -Spektrometrie.

Für den Positronenanteil gilt:

$$I_{\beta^+} = \frac{A_{\beta^+}}{A_{\beta^+} + A_{EC}} \quad (17)$$

mit A_{β^+} = Anzahl der Positronenzerfälle bei t_0

A_{EC} = Anzahl der Zerfälle durch Elektroneneinfang bei t_0

3.12 Experimente zur Produktion von ^{120g}I und ^{124}I

Zur Produktion von ^{120g}I und ^{124}I wurden Bestrahlungen bei höheren Strahlströmen durchgeführt. In allen Fällen wurden Targets von hochangereichertem TeO_2 bestrahlt. Die oxidische Form besitzt gegenüber der metallischen Form eine höhere Stabilität und Temperaturbeständigkeit. Die Darstellung der Telluroxide aus elementarem Tellur erfolgte durch Lösen in wenig Königswasser. Nach dem Einengen bis zur Trockene, wurde der Rückstand dreimal mit wenig konz. Salpetersäure aufgenommen und jeweils erneut zur Trockene eingeeengt.

Die Produktion von ^{120g}I erfolgte über zwei Reaktionen, nämlich $^{122}\text{Te}(p,3n)$ und $^{120}\text{Te}(p,n)$. Bei der ersten Reaktion wurden ca. 50 mg 97,1 % angereichertes $^{122}\text{TeO}_2$ auf eine Platinscheibe von 15 mm Durchmesser aufgeschmolzen. Um ein Verlust des Targetmaterials zu verhindern, wurde die Platinscheibe mit einer 25 μm dicken Aluminiumfolie umwickelt. Das Target wurde am Injektor von COSY 2 Stunden mit 1 μA Protonen bestrahlt. Die Einschußenergie der Protonen war fest auf 45 MeV eingestellt, daher wurde die Protonenenergie mit dicken Titanscheiben auf 35 MeV degradiert. Eine Rechnung nach Williamson et al. [42] zeigte, daß der Energiebereich im Target $E_p = 35 \rightarrow 34,4$ MeV entsprach. Bei der Bestrahlung entstand eine Mischung aus ^{120g}I , ^{120m}I und ^{121}I , welche auf naßchemischen Weg abgetrennt wurde. Die naßchemische Abtrennung wurde der Abtrennung mittels trockener Destillation wegen der höheren chemischen Ausbeute vorgezogen. Dazu wurde die Aluminiumfolie manuell entfernt und das angereicherte $^{122}\text{TeO}_2$ in wenig konz. Salzsäure gelöst. Nach Verdünnung mit wenig Wasser wurde das angereicherte ^{122}Te mit 25 %-iger Hydrazinlösung reduziert und mittels Zentrifuge abgetrennt.

Eine andere getestete Methode der naßchemischen Abtrennung beruht auf dem amphoteren Charakter des TeO_2 . Dazu wurde das TeO_2 in wenig heißer NaOH-Lösung gelöst. Nach Zugabe von 1 mL 0,1 m NaI-Trägerlösung wurde mit Salzsäure neutralisiert. Bei der Neutralisation fällt das im alkalischen als Tellurat vorliegende Tellur wieder als TeO_2 aus und kann abgetrennt werden, während das Radioiod in Lösung verbleibt. Nach mehrfachen Waschen kann das getrocknete TeO_2 wieder aufgeschmolzen werden. Diese Methode hat den Vorteil, daß das Tellur wieder als Oxid anfällt und somit schnell wieder Einsatzbereit ist.

Die Verwendung von Iodidträger erleichtert die naßchemische Abtrennung des Radioiods. Da das so abgetrennte Radioiod nur für Phantommessungen verwendet wurde, stellte der Trägerzusatz kein Problem dar. Bei Phantommessungen ist nur die absolute Aktivität entscheidend; die spezifische Aktivität ist unbedeutend. Für die späteren Markierungsexperimente wurde nur trägerfreies Radioiod eingesetzt.

Bei der Produktion von ^{120}gI über die $^{120}\text{Te}(\text{p},\text{n})$ -Reaktion wurde 30 mg 99,9 % angereichertes $^{120}\text{TeO}_2$ am CV 28 bestrahlt. Die Bestrahlungen wurden mit einem von G. Blessing neu entwickelten Targetsystem (Abb. 15) durchgeführt. Das $^{120}\text{TeO}_2$ wurde in eine Vertiefung (Durchmesser: 10 mm) einer Platinscheibe von 30 mm Durchmesser geschmolzen. Zusätzliche Halt für das $^{120}\text{TeO}_2$ leistete ein Platinnetz, welches durch Punktschweißen über der Vertiefung befestigt wurde. Die Projektilenergie im Target betrug $15,0 \rightarrow 14,3$ MeV. Das Target wurde von vorne mit Helium (im Kreislauf geführt bei 8 bar Druck) und von hinten mit Wasser gekühlt. Die Bestrahlungen wurden mit Rücksicht auf den hohen Preis des Targets mit maximal 5 μA durchgeführt. Die Abtrennung des Radioiods erfolgte durch trockene Destillation, da hier die geringsten Verluste an Targetmaterial entstanden.

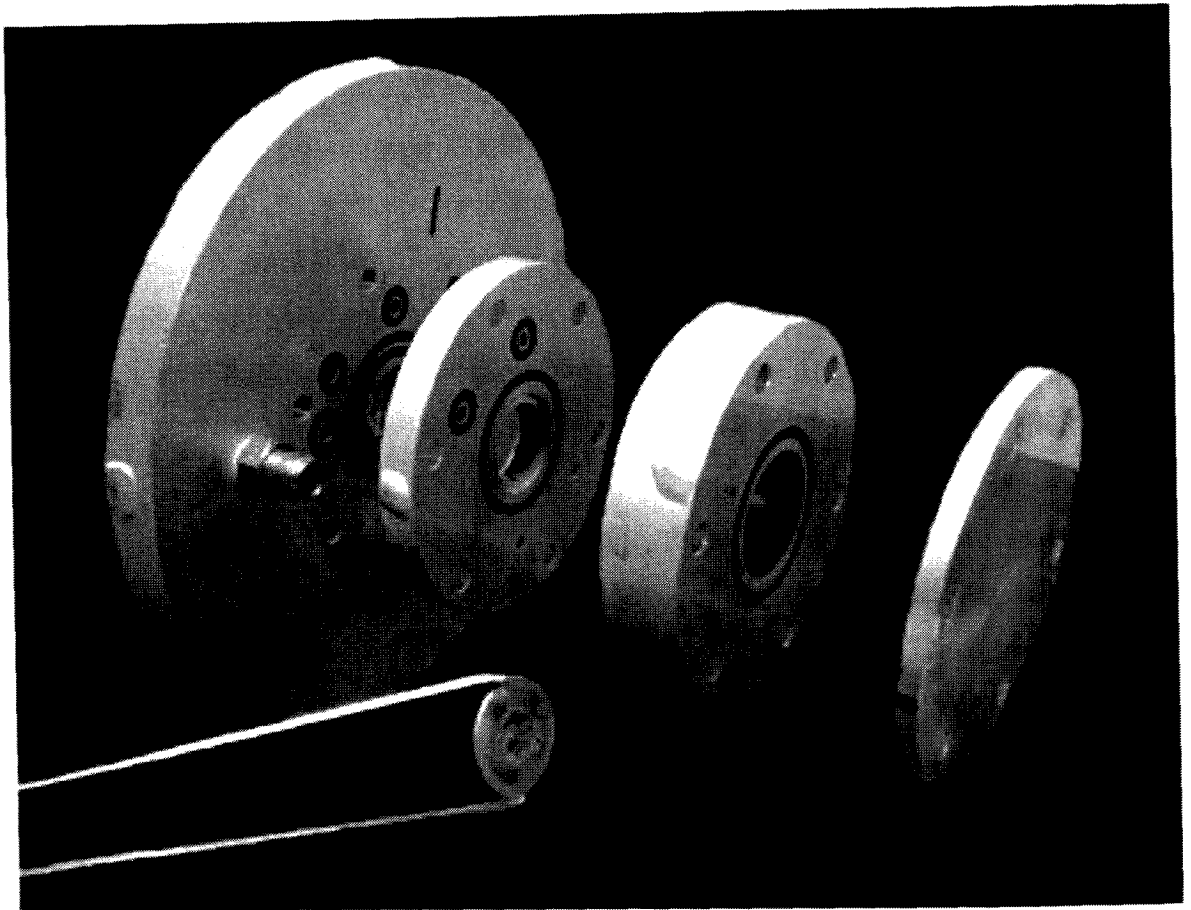


Abb. 15 Targetsystem zur Produktion von Radioiod.

Die Produktion von ^{124}I erfolgte über die $^{124}\text{Te}(p,n)$ -Reaktion. Hierzu wurden 80 – 200 mg 99,8 % $^{124}\text{TeO}_2$ am CV 28 bestrahlt. Das Targetsystem war das selbe, wie im Fall des ^{120}gI . Bei einer Eintrittsenergie von 15,5 MeV traten die Protonen mit einer Energie zwischen 12,4 und 13,7 MeV wieder aus der $^{124}\text{TeO}_2$ -Schicht heraus. Die Bestrahlungszeiten lagen zwischen 2 und 10 Stunden bei Strömen zwischen 5 und 15 μA . Auch hier erfolgte die Abtrennung des Radioiods durch trockene Destillation.

Nach der Abtrennung wurde von den Radioiodlösungen jeweils ein Aliquot von 20 μL entnommen und γ -spektrometrisch untersucht. Neben der produzierten Aktivität lag das Augenmerk besonders auf der nuklidischen Zusammensetzung des Radioiods.

3.13 Entwicklung einer Apparatur zur Abtrennung des Radioiods

Die Abtrennung des Radioiods vom Targetmaterial ist auf naßchemischem Weg [89-91] oder mittels trockener Destillation [72,92-95] üblich. Beim zweiten Verfahren sind die Verluste an Targetmaterial geringer. Ein weiterer Vorteil ist, daß das Target dabei nicht zerstört wird und direkt für neue Bestrahlungen einsetzbar ist.

Im Institut wurde zur Produktion von ^{124}I angereichertes $^{124}\text{TeO}_2$ eingesetzt. Die Bestrahlungen wurden mit einem Targetsystem mit 4π -Wasserkühlung durchgeführt [76]. Bei verschiedenen Produktionsbestrahlungen wurde aber festgestellt, daß mit zunehmenden Strömen der Verlust von Radioiod ins Kühlwasser rapide anstieg. Aus diesem Grund wurde ein neues Targetsystem entwickelt, welches eine Frontkühlung mit Helium und eine Rückkühlung mit Wasser besitzt.

Der große Durchmesser des Platinhalters gewährleistet eine gute Kühlung und verhindert den Verlust an Radioiod während der Bestrahlung. Allerdings verlangte diese Konstruktion die Entwicklung einer neuen Destillationsapparatur.

Die im Institut vorhandene Apparatur [94] bestand aus einem Hochfrequenzgenerator, der über eine Spule einen Strom in einer Platinröhre mit 25 mm Innendurchmesser induzierte und die Röhre so heizte. Die Platinröhre selber befand sich in einer Quarzröhre von 12 cm Länge. Mit diesem System konnte die Schmelztemperatur des TeO_2 von 733 °C innerhalb 4 Minuten erreicht werden. Der Hochfrequenzgenerator mußte während des Betriebs mit Wasser gekühlt werden. Bei ersten Abtrennungsversuchen mit dem neuen Targethalter wurde dieser in einer Quarzröhre mit einem handelsüblichen Röhrenofen erhitzt. Allerdings besitzen Röhrenöfen mit einem Durchmesser > 30 mm meist eine beträchtliche Länge. Daraus resultiert eine große innere Oberfläche der Quarzröhre, an der sich Radioiod absetzen kann. Zudem benötigten der getestete Ofen ca. 15 min, um die gewünschte Temperatur von 733 °C zu erreichen.

Bei der Entwicklung der neuen Destillationsapparatur wurde versucht die geringen Ausmaße der Quarzröhre bei der Induktionsheizung mit der einfachen Konstruktion

eines Röhrenofens zu kombinieren. Die Idee war daher Heizdrähte direkt um die Quarzröhre zu wickeln.

Die neuentwickelte Destillationsapparatur besteht aus einer Quarzröhre von 8 cm Länge und einem Innendurchmesser von 30 mm. Diese Quarzröhre ist mit einem 1 mm dicken Graphitband umwickelt. Als nächstes ist eine dünne Schicht eines hochtemperaturbeständigen Keramikklebers aufgetragen. Auf der Keramikschicht sind die Heizdrähte (Konstantandraht mit 0,5 mm Durchmesser) aufgewickelt. Als letzte Schicht wurde dann wieder eine Schicht Keramikkleber aufgetragen. Das ganze ist dann in einen Graphitblock eingearbeitet worden.

Konstantandraht wurde als Heizdraht ausgewählt, da er einen relativ hohen elektrischen Widerstand besitzt, was eine hohe Heizleistung versprach. Zudem ist der elektrische Widerstand über einen großen Temperaturbereich relativ konstant, was einer automatischen Temperaturüberwachung entgegenkommt, da nicht mit sehr hohen Einschaltströmen zu rechnen ist. Weil Konstantandraht nur bis ca. 600 °C an Luft beständig ist, mußte er in ein hochtemperaturbeständiges elektrisch nicht leitendes Material eingebettet werden. Zu diesem Zweck erwies sich CERAMA-DIP 538, ein hochtemperaturbeständiges, tixotropes Coatinmaterial auf Basis von Al_2O_3 , als geeignet. Ähnliche Materialien werden auch zur Befestigung der Hitzekacheln des Space Shuttle benutzt. Da die thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Quarzglas und Coatingmaterial verschieden sind, ist es nicht möglich das Coatingmaterial direkt auf Quarzglas aufzutragen. Verschiedene Versuche führten zum Springen des Quarzglases. Daher wurde zwischen Glas und Keramik eine Graphitschicht angebracht. Bei dieser Graphitschicht handelt es sich um dünnes Graphitband, wie es zur Abdichtung von Quarzschliffen bei hohen Temperaturen verwendet wird. Nach dem Anbringen des Graphitbandes wurde dieses 10 Minuten bei 800 °C getempert. So konnten Zusätze im Graphit entweichen, die später die Keramikschicht hätten zerstören können. Um einen elektrischen Kurzschluß der Heizdrähte durch das Graphit zu verhindern, wurde zuerst eine Isolationsschicht aus Keramik aufgetragen. Der Graphitblock um das ganze verhindert eine Zerstörung der spröden Keramikschicht, außerdem wirkt er thermisch isolierend. Auch die Befestigung der Apparatur erfolgt über den Graphitblock.

Die automatische Temperaturkontrolle erfolgte durch ein Ni/Konstantan-Thermoelement, das in die Quarzröhre eingebaut ist. Angeschlossen ist das Thermoelement an einen Temperaturkontroller, der bei Unter- bzw. Überschreiten der eingestellten Temperatur über Relais einen Stelltrafo ein- und ausschaltet. Der Stelltrafo ist mit dem Temperaturkontroller, sowie mit einem Einschaltstrombegrenzer und einem Voltmeter, in einem 19'' Einbauelement integriert. Das Einbauelement ließ sich in einem Abstand zur Ausheizröhre aufbauen, um so die Destillationsapparatur aus der Entfernung kontrollieren und steuern zu können.

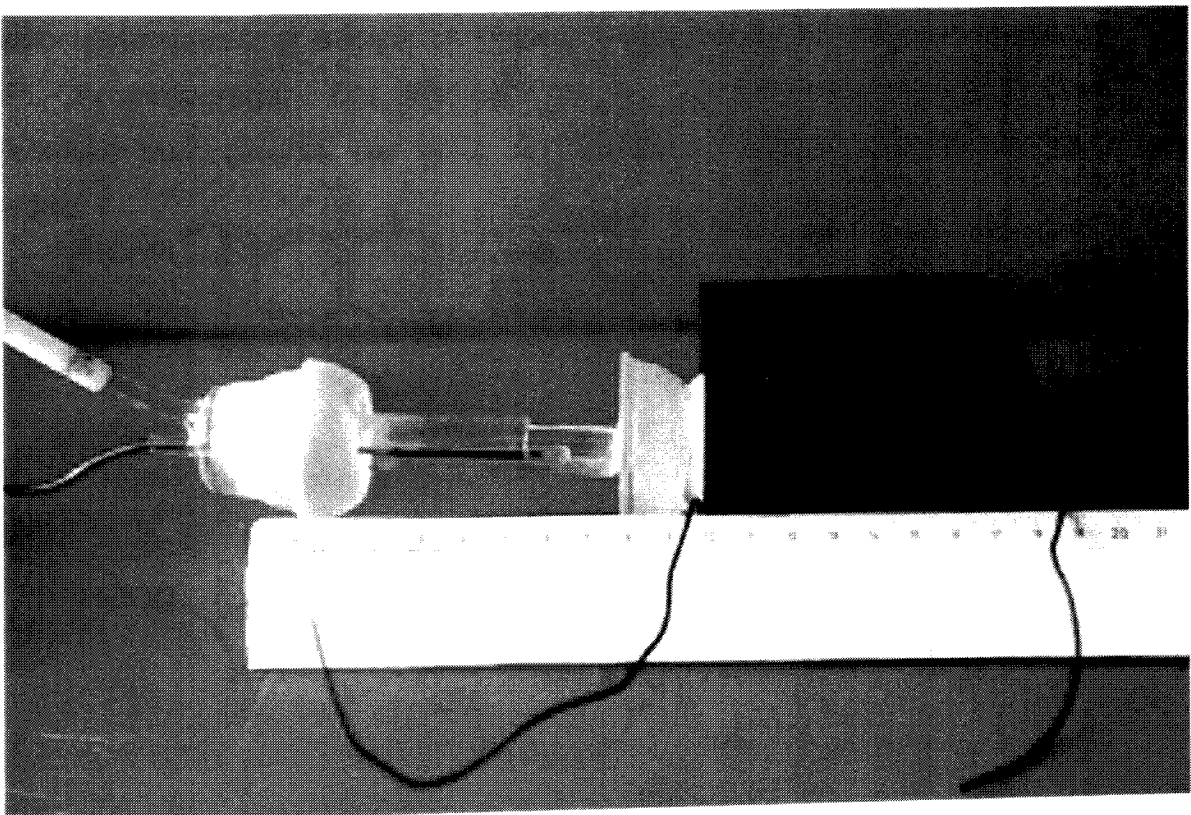
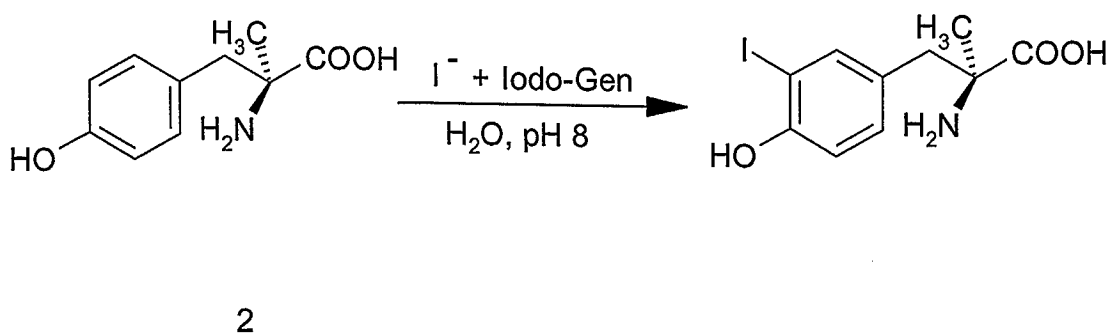
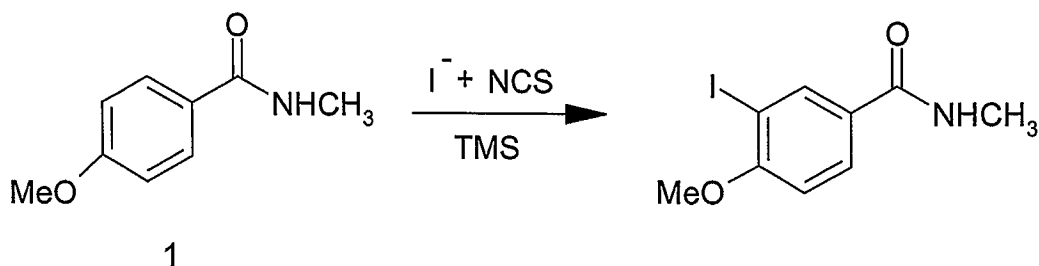


Abb. 16 Neuentwickelte Ausheizapparatur

3.14 Markierungsversuche

Bisher wurde ^{120}gI nur zur Markierung von meta-Iodobenzylguanidin (mIBG) eingesetzt [96]. Um die Qualität des abgetrennten ^{120}gI und ^{124}I zu testen, wurde es zur Markierung von 4-Methoxy-N-methylbenzamid¹⁾ [97], einem Tracer für Melanome, eingesetzt. Eine weitere Markierung wurde an Methyltyrosin²⁾ [98,99] durchgeführt. Iodmethyltyrosin dient als Tracer für Hirntumore [100] und wird auch zur selektiven Bestimmung des zerebralen Aminosäuretransports [101] herangezogen. Um einen Vergleich zu haben, wurden beide Markierungen auch mit käuflich erworbenen ^{131}I durchgeführt. Beide Markierungen werden im Institut routinemäßig durchgeführt.



Für die Markierung von 4-Methoxy-N-methylbenzamid¹⁾ wurde ein Teil des abgetrennten ^{120}gI und ^{124}I getrocknet und mit 4-Methoxy-N-methylbenzamid in Trifluormethansulfonsäure als Solvens aufgenommen. Nach Zusatz von N-Chlorsuccinimid (NCS) bildet sich in-situ das elektrophile Iodierungsmittel N-Iodsuccinimid (NBS), welches das Edukt markiert.

Als Oxidationsmittel für die Markierung von Methyltyrosin²⁾ diente Iodo-Gen, welches in wenig Chloroform gelöst in ein Reacti Vial gegeben wurde. Nach Verflüchtigung des Chloroforms bleibt Iodo-Gen als dünner Film auf der Wand zurück. Ein Teil der abgetrennten ¹²⁰I- und ¹²⁴I-Lösung wurde mit pH-8-Puffer verdünnt und zusammen mit Methyltyrosin in das Reacti Vial gegeben. Nach 10 min Rühren bei Raumtemperatur wurde die Reaktion durch Zugabe von Natriumbisulfit unterbrochen.

Die Trennung der Produkte erfolgte mittels HPLC. Die Identifizierung der einzelnen Bestandteile erfolgte durch Vergleich der Retentionszeiten der aktiven Bestandteile mit den entsprechenden inaktiven Standardverbindungen. Die radiochemische Ausbeutebestimmung erfolgte in beiden Fällen mittels Peakflächenbestimmung im HPL-Chromatogramm. Die Markierungen wurden zusammen mit Dipl. Chem. E. Mennicke durchgeführt, der auch die jeweiligen inaktiven Standardverbindungen lieferte.

4 Kernmodell-Rechnungen

4.1 Rechencode ALICE-IPPE

Bei ALICE handelt es sich um einen Code, der das Hybridmodell [102,25] für den Precompoundkern-Anteil und die Weisskopf-Ewing-Verdampfung [1] für den Compoundkern-Anteil der Reaktion benutzt. Drehimpuls und Parität werden bei den Rechnungen nicht berücksichtigt. Dies vereinfacht die Arbeit mit dem Programm sehr und liefert trotzdem befriedigende Resultate für Targetkerne mit $A > 30$. Mit ALICE lassen sich p-, n-, ^3He - und α -induzierte Reaktionen bis zu 200 MeV berechnen. Die Qualität der Ergebnisse nimmt von p-induzierten Reaktionen über d-induzierte, ^3He -induzierte nach α -induzierte Reaktionen hin ab. Grundlage des Programms ist das Fermi-Gas-Modell. Bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte werden sowohl Precompound-Emissionen freier Nukleonen (einzelne Nukleonen und mehrfache Nukleonen-Emission) als auch die Emission von α -Teilchen und Deuteronen berücksichtigt.

Von der ALICE-Grundversion gibt es zwei Weiterentwicklungen. Bei ALICE-HMS erfolgt die Berechnung von Precompound-Reaktionen durch Monte-Carlo-Simulationen [103]. Im Gegensatz zur Grundversion ist die Berechnung von ^3He - oder α -induzierten Reaktionen nicht möglich. Die ALICE-IPPE Version [26] verwendet das generalisierten Superfluid-Modell [104-107] zur Abschätzung der Kernniveaudichten und zusätzlich das geometrieabhängige Hybridmodell für Clusteremissionen bei Precompound-Reaktionen. Im Gegensatz zum Fermi-Gas-Modell (bei der Grundversion) werden beim Superfluid-Modell auch Nukleonen-, Paarungs- und Schaleneffekte berücksichtigt.

Vor der Ausführung des Programms ALICE-IPPE muß eine ASCII Input-Datei erstellt werden. Diese Datei enthält die Parameter, die zur Ausführung des Programms und die Erstellung einer Output-Datei benötigt werden. Ein großer Vorteil dieses Programms ist die geringe Anzahl von benötigten Parameter. Es genügen die Angaben von Ladung und Masse des Projektils und des Targetkerns, sowie die Energien, für welche die Berechnungen durchgeführt werden sollen. Weitere optionale Parameter geben die Rechentiefe und die Durchführung weiterer Berechnungen, wie z.B. Q-

Wert an. Die Besetzung angeregter Zustände ist mit ALICE-IPPE nicht möglich. In dieser Arbeit wurden die Anregungsfunktionen der (p,xn)-Reaktionen an ^{120}Te bis 50 MeV in Zusammenarbeit mit Dr. Yu. N. Shubin aus Obninsk, Rußland, der sich 1999 im Institut aufhielt, berechnet. Mit Dr. M. Nortier aus Faure, Südafrika, wurden (p,xn)-Reaktionen an ^{125}Te bis Protonenenergien von ca. 100 MeV berechnet.

4.2 Reencode STAPRE

STAPRE ist ein Programm, basierend auf dem Hauser-Feshbach-Formalismus [108,109], zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten p-, n-, ^3He - und α -induzierter Reaktionen. Die schrittweise Emission von Nukleonen wird nach dem statistischen Modell, unter Beachtung des Drehimpuls und des Spins, berechnet. Mit Hilfe dieses Modells werden auch Populationen von angeregten Zuständen berechnet. Im Gegensatz zu ALICE lassen sich so auch Isomerenverhältnisse bei Kernreaktionen berechnen. Bei höheren Energien werden zusätzlich auch Precompound-Reaktionen auf Basis des Exciton-Modells [110-113] einbezogen.

Auch bei STAPRE-Rechnungen ist der erste Schritt die Erstellung einer Input-Datei mit einer ganzen Reihe von Parametern. Diese Parameter sind:

- Projektil
- Masse, Spin und Parität des Targetkerns
- FM-Konstante, welche interne Übergänge im Kern definiert. Die Gleichung zur Berechnung der Konstante ist in der Literatur angegeben [24].
- Bindungsenergien für alle Nukleonen, die vom jeweiligen Compoundkern emittiert werden [114].
- Niveaudichte-Parameter für den Compoundkern und die nach der Emission von Nukleonen resultierenden Kerne. Die Parameter lassen sich aus der Literatur entnehmen [115].
- Transmissions-Koeffizienten
- Diskrete Energielevel für den Compoundkern und die nach der Emission von Nukleonen resultierenden Kerne
- Verzweigungsverhältnisse für γ -Übergänge im Produktkern

Leider sind die meisten Parameter für die, in den hiesigen Rechnungen verwendeten Kerne, völlig unbekannt bzw. widersprechen sich bei verschiedenen Arbeiten. So ist der Spin des metastabilen Zustands in der Literatur mit 4-8 bzw. 7⁻ angegeben [116,117]. Auch über die Paritäten der meisten Kernniveaus gibt es in der Literatur keine Informationen. Aus diesem Grunde wurde für die Rechnungen auf ähnliche Nuklide mit bekannten Kerndaten zurückgegriffen. Da es natürlich schwierig ist zu sagen, welche Kerne ähnlich sind, wurden die Rechnungen mit verschiedenen Kernen durchgeführt. Die besten Ergebnisse lieferten die Rechnungen bei Austausch von ¹²⁰I durch ¹²²Sb, ¹²⁰Te durch ¹²⁰Sn, ¹¹⁷Sb durch ¹²²Sb, ¹¹⁹Te durch ¹¹⁹Sn, ¹¹⁹I durch ¹¹⁹Sn, ¹¹⁹Te durch ¹¹⁹Sn, ¹¹⁶Sb durch ¹²²Sb und ¹¹⁸Te durch ¹¹⁸Sn.

Bei den Rechnungen wurden bei ^{120m}I mit einem Kernspin von 4 - 8 mit den Paritäten (+) und (-) gerechnet. Die Energiedifferenz zwischen Grundzustand und metastabilen Zustand von ¹²⁰I ist in der Literatur mit 900 keV angegeben [117]. Auch hier wurde bei den Rechnungen die Werte für die Energiedifferenz immer wieder variiert. Diese Rechnungen wurden in Zusammenarbeit mit Dr. S. Sudár aus Debrecen, Ungarn, der sich 1998 und 1999 eine Zeitlang im INC aufhielt, durchgeführt.

5 Ergebnisse und Diskussion

5.1 Kernreaktionen zur Produktion von ^{120g}I

In dieser Arbeit wurden protonen- und deutroneninduzierte Kernreaktionen an 99,0 % angereichertem ^{120}Te untersucht. Diese Reaktionen laufen bei niedrigen Energien ab und sind daher auch an kleinen Zyklotronen (Baby-Zyklotronen) durchführbar. Die bestrahlten Proben wurden zerstörungsfrei gemessen.

5.1.1 Protoneninduzierte Kernreaktionen an ^{120}Te

Die Reaktionswirkungsquerschnitte wurden erstmals bestimmt und sind in Tabelle 7 aufgeführt. Oberhalb von 28 MeV konnten keine Wirkungsquerschnitte von ^{120m}I berechnet werden, da hier bereits ^{118m}I und ^{118g}I gebildet wurden, die annähernd die gleichen γ -Linien besitzen wie ^{120m}I und ^{120g}I . In Abb. 17 sind die Reaktionswirkungsquerschnitte in Abhängigkeit von der Protonenenergie aufgetragen. Die Anregungsfunktionen zur Bildung von ^{120m}I und ^{120g}I zeigen einen parallelen Verlauf, was auf den gleichen Bildungsmechanismus für beide Isomere schließen lässt.

Für eine mögliche Produktion bietet sich der Energiebereich $E_p = 16 \rightarrow 9 \text{ MeV}$ an. Bei einem kreisförmigen Target von 10 mm Durchmesser entspricht dies einer Targetmasse von 250 mg $^{120}\text{TeO}_2$. In dem angegebenen Energiebereich ist eine geringe Verunreinigung durch ^{119}I zu erwarten, was in Anbetracht der wesentlich kürzeren Halbwertszeit im Vergleich zu ^{120g}I kein Problem darstellt.

Tabelle 7. Wirkungsquerschnitte der $^{120}\text{Te}(\text{p},\text{xn})^{120\text{m},120\text{g},119}\text{I}$ -Reaktionen

Energie [MeV]	Wirkungsquerschnitt [mb]		
	$^{120}\text{Te}(\text{p},\text{n})^{120\text{g}}\text{I}$	$^{120}\text{Te}(\text{p},\text{n})^{120\text{m}}\text{I}$	$^{120}\text{Te}(\text{p},2\text{n})^{119}\text{I}$
35,2 ± 0,5	28 ± 5		175 ± 30
32,5 ± 0,6	26 ± 5		297 ± 50
30,1 ± 0,6	36 ± 7		428 ± 73
28,6 ± 0,7	40 ± 8		474 ± 81
27,9 ± 0,7	30 ± 6	3,1 ± 0,7	606 ± 103
27,7 ± 0,7	37 ± 7	2,9 ± 0,6	527 ± 90
26,6 ± 0,8			553 ± 94
25,9 ± 0,8	40 ± 8	3,3 ± 0,7	643 ± 109
25,5 ± 0,8	41 ± 8	4,0 ± 0,9	515 ± 88
24,2 ± 0,9	54 ± 11		477 ± 81
23,6 ± 0,9	45 ± 9	4,7 ± 1	502 ± 85
23,2 ± 0,9	61 ± 12	6,2 ± 1	559 ± 95
21,7 ± 1,0	69 ± 13	8,2 ± 2	367 ± 62
20,6 ± 1,0	102 ± 19	11 ± 2	388 ± 66
20,5 ± 0,2	79 ± 15	6,7 ± 1	402 ± 68
19,4 ± 0,2	180 ± 34	21 ± 5	552 ± 94
18,9 ± 0,2	132 ± 25	15 ± 3	411 ± 70
18,4 ± 1,1	224 ± 43	15 ± 3	171 ± 29
18,4 ± 0,2	189 ± 36	16 ± 4	383 ± 65
18,2 ± 0,2	202 ± 38	18 ± 4	423 ± 72
17,7 ± 0,3	240 ± 46	19 ± 4	335 ± 57
17,3 ± 0,2	225 ± 43	18 ± 4	256 ± 44
17,2 ± 0,2	339 ± 64	23 ± 5	234 ± 40
16,7 ± 0,3	394 ± 75	28 ± 6	282 ± 48
16,3 ± 0,3	383 ± 73	25 ± 5	177 ± 30
15,7 ± 0,4	527 ± 100	29 ± 6	116 ± 20
15,3 ± 0,4	483 ± 92	25 ± 6	23 ± 4
15,3 ± 0,4	535 ± 102	28 ± 6	39 ± 7
14,5 ± 0,3	635 ± 121	20 ± 4	
14,0 ± 0,3	496 ± 94	18 ± 4	
13,5 ± 0,4	532 ± 101	17 ± 4	
12,2 ± 0,4	492 ± 93	14 ± 3	
11,5 ± 0,2	407 ± 77	11 ± 2	
10,5 ± 0,2	256 ± 49	10 ± 2	
9,9 ± 0,3	327 ± 62	8,2 ± 2	
9,3 ± 0,3	273 ± 52	6,2 ± 1	
8,3 ± 0,4	237 ± 45	3,3 ± 0,7	
8,0 ± 0,4	110 ± 21	1,9 ± 0,4	
7,3 ± 0,6	116 ± 22	1,8 ± 0,4	
6,9 ± 0,5	84 ± 16	0,9 ± 0,2	
6,6 ± 0,6	7,7 ± 1		

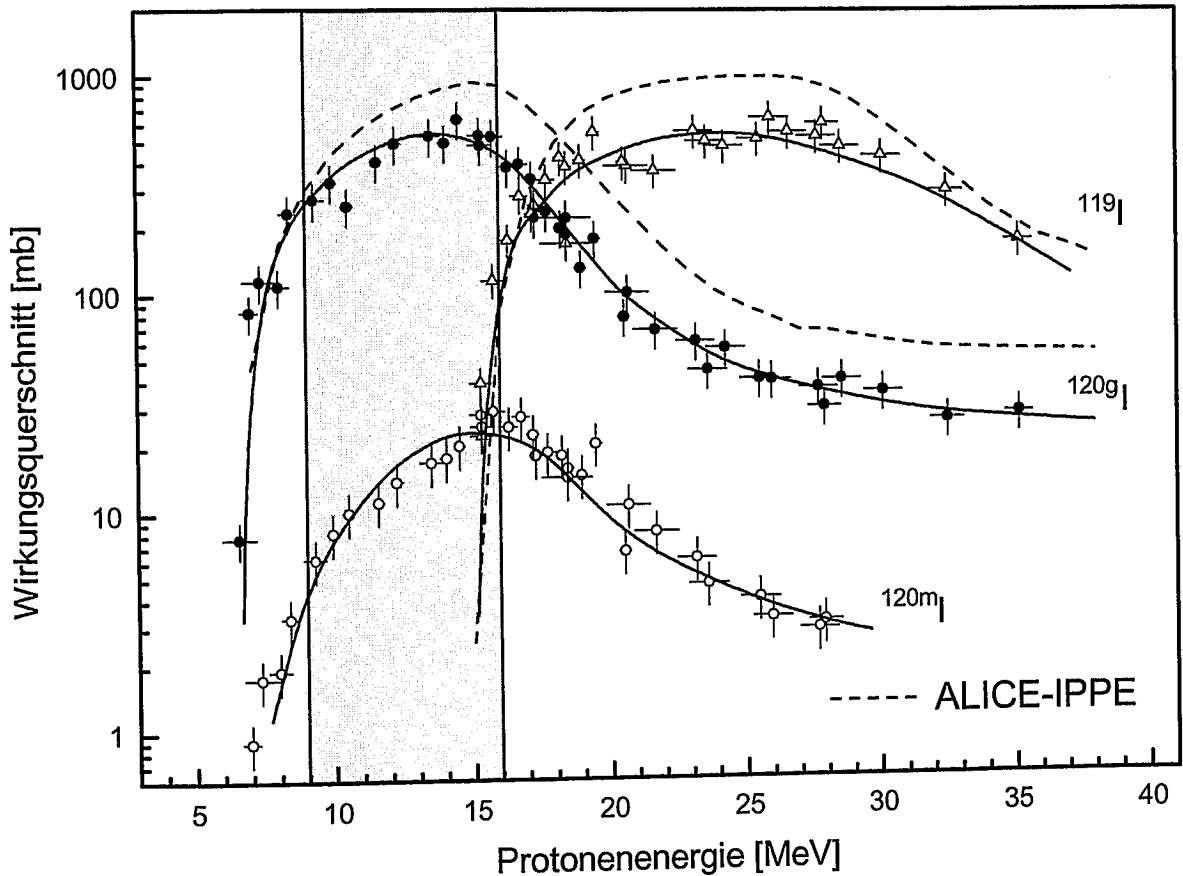


Abb. 17 Anregungsfunktionen der $^{120}\text{Te}(p,n)^{120m,g}\text{I}$ - und $^{120}\text{Te}(p,2n)^{119}\text{I}$ -Reaktion. Die mit ALICE-IPPE theoretisch berechneten Funktionen sind durch gestrichelte Linien dargestellt. Die durchgezogenen Linien beschreiben gefittete Funktionen durch die Meßwerte.

5.1.2 Deuteroneninduzierte Kernreaktionen an ^{120}Te

Alle Daten wurden erstmals bestimmt und sind in Tabelle 8 zusammengestellt. In Abb. 18 sind sie in Abhängigkeit der Protonenenergie aufgetragen. Das Maximum der $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120m,g}\text{I}$ -Reaktion liegt wahrscheinlich bei ca. 18 MeV. Genauereres könnten aber nur Messungen bei höheren Energien bestätigen, die jedoch am CV 28 nicht verfügbar sind. Wie bei der (p,n)-Reaktion zeigen die Anregungsfunktionen zur Bildung von ^{120m}I und ^{120g}I einen parallelen Verlauf, was auch hier auf den gleichen Bildungsmechanismus für beide Isomere schließen läßt. Eine Produktion über diese Route ist nicht sinnvoll, da immer ein hoher Anteil ^{121}I als Verunreinigung auftritt.

Tabelle 8 Wirkungsquerschnitte der $^{120}\text{Te}(\text{d},\text{xn})^{121,120\text{m,g}}\text{I}$ -Reaktionen

Energie [MeV]	Wirkungsquerschnitt [mb]		
	^{120}gI	$^{120\text{m}}\text{I}$	^{121}I
$13,5 \pm 0,2$	507 ± 96	37 ± 8	226 ± 36
$13,5 \pm 0,2$	505 ± 96	36 ± 8	195 ± 31
$13,5 \pm 0,2$	476 ± 90	40 ± 9	188 ± 30
$13,1 \pm 0,2$	372 ± 71	26 ± 6	180 ± 29
$12,4 \pm 0,3$	430 ± 82	24 ± 5	263 ± 42
$12,4 \pm 0,3$	382 ± 73	25 ± 6	280 ± 45
$11,8 \pm 0,3$	403 ± 77	21 ± 5	294 ± 47
$11,4 \pm 0,3$	320 ± 61	15 ± 3	351 ± 56
$11,1 \pm 0,3$	211 ± 40	13 ± 3	339 ± 54
$10,6 \pm 0,4$	165 ± 31	$8,4 \pm 1,8$	303 ± 48
$10,6 \pm 0,4$	127 ± 24	$6,6 \pm 1,5$	283 ± 45
$10,0 \pm 0,4$	96 ± 18	$3,2 \pm 0,7$	364 ± 58
$9,5 \pm 0,4$	44 ± 8	$1,2 \pm 0,3$	427 ± 68
$9,5 \pm 0,4$	54 ± 10	$2,3 \pm 0,5$	390 ± 62
$9,2 \pm 0,4$			409 ± 65
$9,0 \pm 0,5$	$7,1 \pm 1,3$		262 ± 42
$7,7 \pm 0,3$			257 ± 41
$7,1 \pm 0,3$			179 ± 29
$6,4 \pm 0,2$			57 ± 9
$6,0 \pm 0,4$			55 ± 9
$5,9 \pm 0,4$			23 ± 4
$5,6 \pm 0,2$			$5,5 \pm 0,9$
$5,2 \pm 0,3$			$8,4 \pm 1,3$

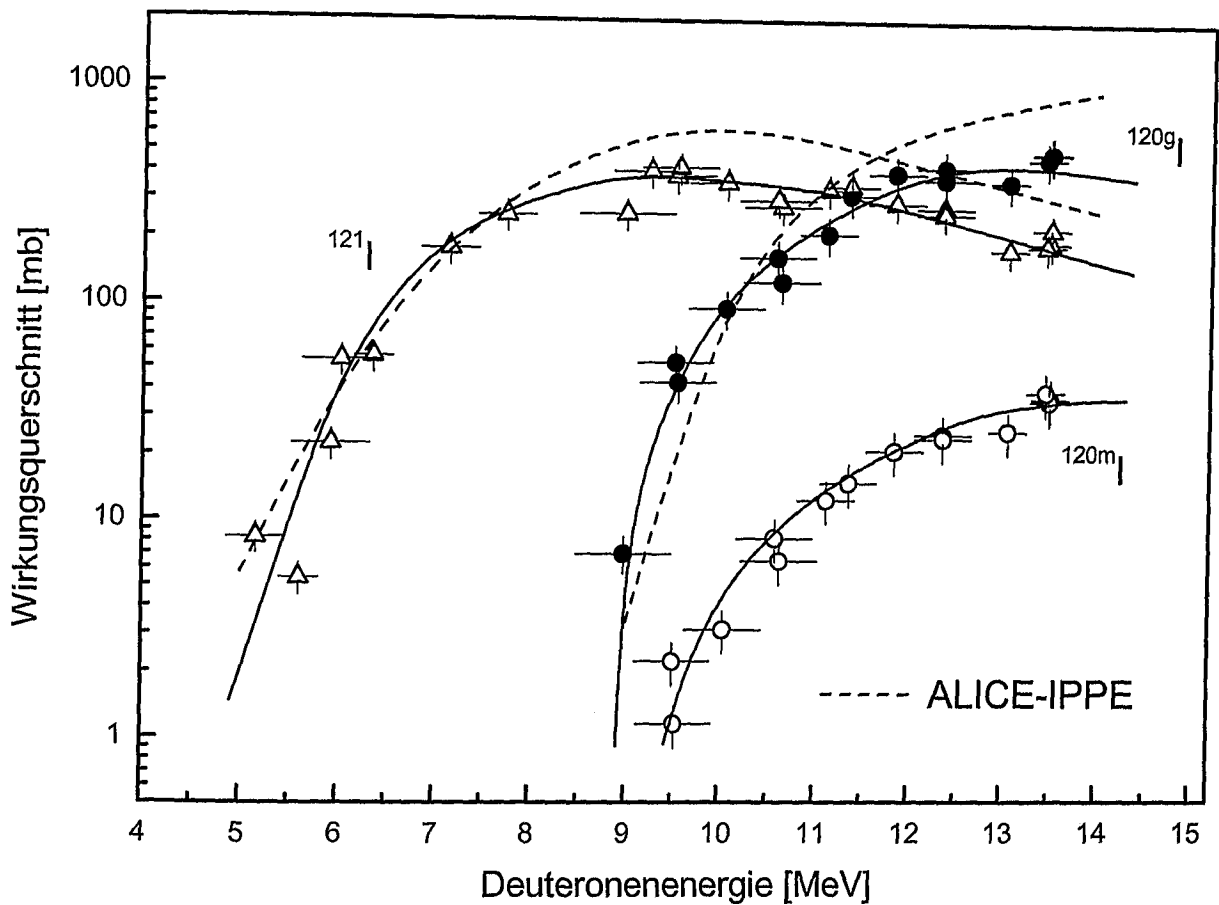


Abb. 18 Anregungsfunktionen der $^{120}\text{Te}(d,n)^{121}\text{I}$ - und $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120m,g}\text{I}$ -Reaktion. Die mit ALICE-IPPE theoretisch berechneten Funktionen sind durch gestrichelte Linien dargestellt. Die durchgezogenen Linien beschreiben gefittete Funktionen durch die Meßwerte.

5.2 Hybridmodellrechnungen der protonen- und deuteroneninduzierten Kernreaktionen an ^{120}Te

Die Ergebnisse der Rechnungen mit ALICE-IPPE zeigen die gestrichelten Linien in Abb. 17 und Abb. 18. Zu beachten ist, daß mit ALICE-IPPE keine isomeren Zustände berechnet werden können. Für ^{120}I bedeutet dies, daß ALICE-IPPE die Summe der Wirkungsquerschnitte für die Bildung des Grundzustandes und des metastabilen Zustandes berechnet. Ein Vergleich der gemessenen Anregungsfunktionen mit den theoretisch ermittelten Anregungsfunktionen zeigt eine gute Übereinstimmung im

Kurvenverlauf. Auch die Reaktionsschwellen werden sehr gut berechnet. Ansonsten liegen die theoretischen Werte etwas über den gemessenen Werten. Es läßt sich vermuten, daß der Beitrag der Precompound-Prozesse zu den (p,xn)- und (d,xn)-Reaktionen bei den hier untersuchten Energien nicht so hoch ist wie theoretisch erwartet.

5.3 Statistische Modellrechnungen zur Verteilung der isomeren Zustände bei protonen- und deuteroneninduzierten Kernreaktionen an ^{120}Te

Zur Berechnung der Isomerenverteilung von $^{120\text{m,g}}\text{I}$ wurde der Computercode STAPRE herangezogen. Im Gegensatz zu Rechnungen mit ALICE-IPPE wurden für STAPRE eine Reihe von Parametern benötigt. Da diese zum größten Teil nicht bekannt waren, wurden die Rechnungen mehrfach mit unterschiedlichen Parametern durchgeführt.

Als erster Parameter wurde der Kernspin und die Parität des metastabilen Zustands variiert. Wie in Abb. 19 und Abb. 20 zu sehen ist, wurden die besten Ergebnisse mit einem Kernspin von 4 bei gerader Parität erzielt. Die Werte bei einem Kernspin von 5 liegen deutlich über den gemessenen Werten. Rechnungen mit einem Kernspin >5 führten zu noch größeren Abweichungen von den gemessenen Werten und wurden nicht dargestellt. Bei diesen Rechnungen wurde mit einer Energiedifferenz von 900 keV zwischen Grundzustand und metastabilen Zustand gerechnet.

Bei weiteren Rechnungen wurden die Werte für die Energiedifferenz zwischen Grundzustand und metastabilen Zustand variiert, wobei der Spin des metastabilen Zustands konstant 4 blieb. Die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Werten ist mit einer Energiedifferenz von 550 keV erreicht worden. Das Ergebnis dieser Rechnung ist ebenfalls in Abb. 19 und Abb. 20 gezeigt. Dieses Ergebnis paßt auch zu den Anregungsfunktionen in Abb. 17 und Abb. 18. Die Reaktionsschwellen der $^{120}\text{Te}(p,n)^{120\text{m}}\text{I}$ - und der $^{120}\text{Te}(p,n)^{120\text{g}}\text{I}$ -Reaktion bzw. der $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120\text{m}}\text{I}$ - und der $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120\text{g}}\text{I}$ -Reaktion liegen nahe beieinander. Der Unterschied der Reaktionsschwellen für die Bildung des Grundzustands bzw. des metastabilen Zustands entspricht der Energiedifferenz der beiden Zustände. Aus Abb. 17 und Abb. 18 ist

ersichtlich, daß die Differenz der Reaktionsschwellen deutlich unter 1 MeV liegt. Vergleichende STAPRE Rechnungen für die Reaktion $^{122}\text{Te}(p,3n)^{120\text{m,g}}\text{I}$ führen zu den gleichen Ergebnissen [118].

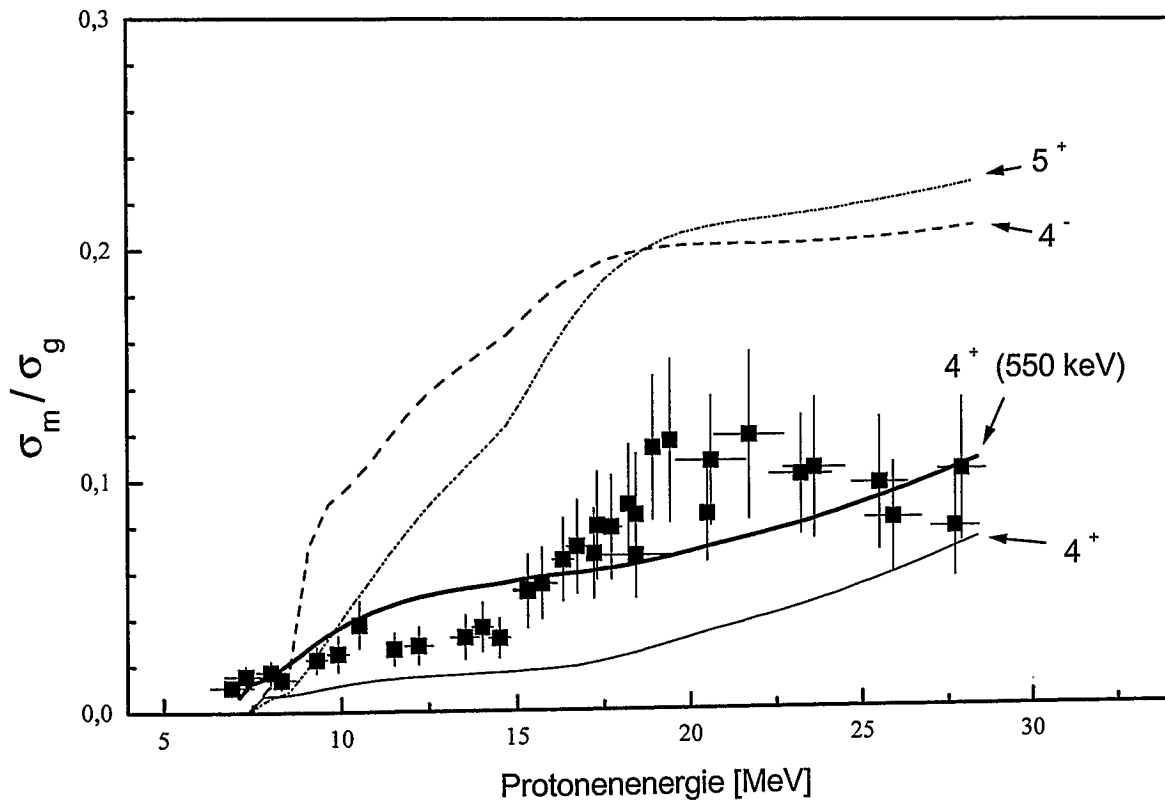


Abb. 19 Experimentelle und berechnete Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte für die Bildung der Isomere $^{120\text{m,g}}\text{I}$ bei der Reaktion $^{120}\text{Te}(p,n)^{120\text{m,g}}\text{I}$. Die Energiedifferenz zwischen Grundzustand und metastabilen Zustand war bis auf eine Rechnung mit 900 keV angesetzt.

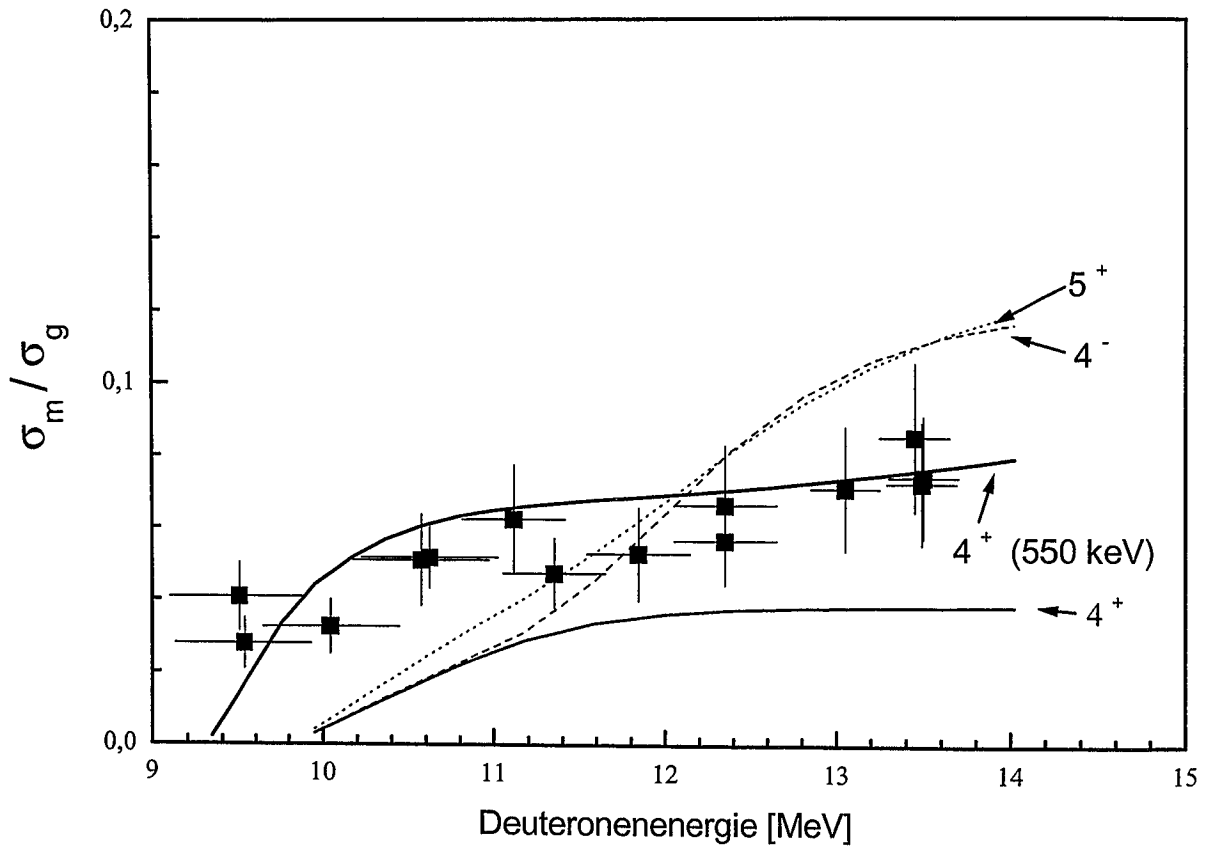


Abb. 20 Experimentelle und berechnete Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte für die Bildung der Isomeren $^{120\text{m,g}}\text{I}$ bei der Reaktion $^{120}\text{Te}(\text{d},2\text{n})^{120\text{m,g}}\text{I}$. Die Energiedifferenz zwischen Grundzustand und metastabilen Zustand war bis auf eine Rechnung mit 900 keV angesetzt.

Die Ergebnisse der STAPRE-Rechnungen für die Anregungsfunktionen der Reaktionen $^{120}\text{Te}(\text{p},\text{xn})^{119,120\text{m,g}}\text{I}$ sind in Abb. 21 zu sehen. Bei diesen Rechnungen wurde mit einer Energiedifferenz von 550 keV und einem Spin von 4 (+) gerechnet. Es liegt eine recht gute Übereinstimmung von Theorie und Praxis vor. Im Energiebereich von 10-15 MeV liegen die berechneten Werte über den experimentellen Werten. Eine Erklärung hierfür konnte jedoch nicht gefunden werden.

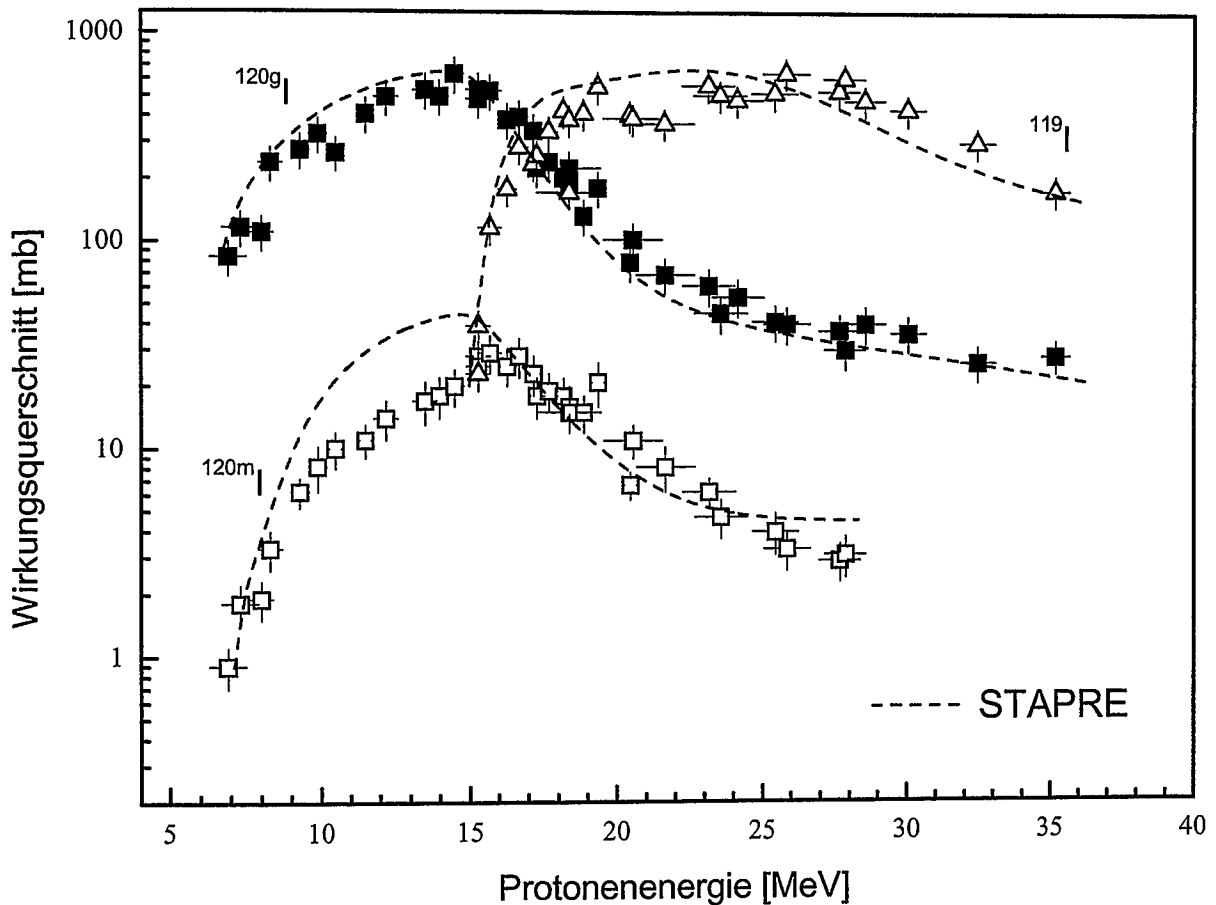


Abb. 21 Vergleich der STAPRE-Rechnungen mit den gemessenen Wirkungsquerschnitten der $^{120}\text{Te}(p,xn)^{119,120m,g}\text{I}$ -Reaktionen.

Die gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den theoretisch berechneten Daten zeigt deutlich, daß die (p,xn) -Reaktionen an ^{120}Te in dem hier untersuchten Energiebereich mit den statistischen Modell unter Einbeziehung der Precompound-Effekte gut beschrieben werden können. Abgesehen von einigen lokalen Abweichungen werden auch die Wirkungsquerschnitte zur Bildung von metastabilen Zuständen relativ gut wiedergegeben.

Die Ergebnisse der STAPRE-Rechnungen für die $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120m,g}\text{I}$ -Reaktionen (Abb. 22) zeigen ebenfalls eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten, obwohl mit steigender Deuteronenenergie die Abweichung etwas zunimmt. Die Parameter der STAPRE-Rechnungen waren die gleichen, die bereits bei den $^{120}\text{Te}(p,xn)$ -Rechnungen verwendet wurden. Die Maxima der $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120m,g}\text{I}$ -

aktionen liegen oberhalb von 15 MeV und bekräftigen damit die bereits geäußerte Vermutung (s.o.).

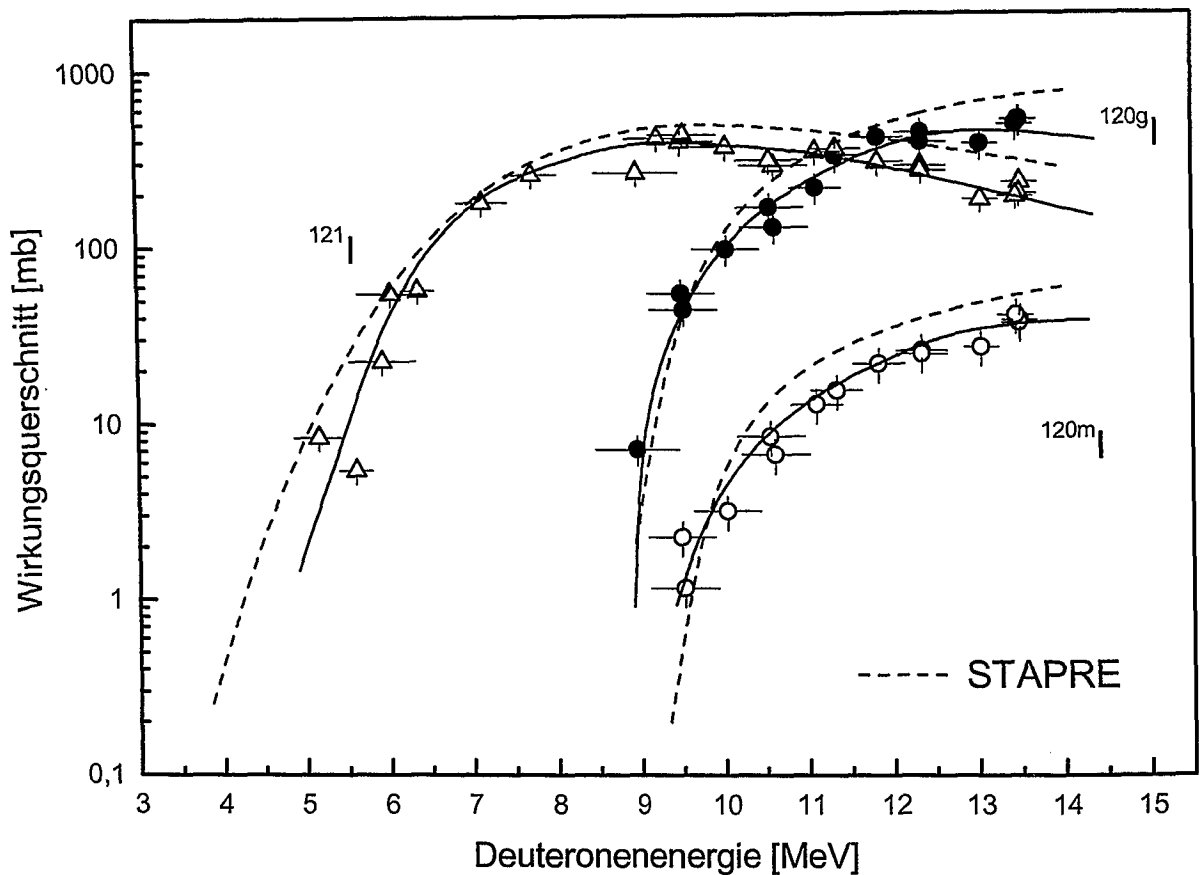


Abb. 22 Vergleich der STAPRE-Rechnungen mit den gemessenen Wirkungsquerschnitten der $^{120}\text{Te}(d,xn)^{121,120m,g}\text{I}$ -Reaktionen. Die durchgezogenen Linien zeigen gefittete Funktionen durch die Meßwerte.

5.4 Integrale Ausbeuten der protonen- und deuteroneninduzierten Reaktionen an ^{120}Te

Die integralen Ausbeuten an ^{119}I und $^{120m,g}\text{I}$ wurden aus den Anregungsfunktionen der $^{120}\text{Te}(p,xn)^{119,120m,g}\text{I}$ -Reaktionen berechnet und sind in Abb. 23 dargestellt. Die Werte beziehen sich auf einen Strahlstrom von 1 μA und einer Bestrahlungsdauer von 1 Stunde. Für den optimalen Energiebereich von $E_p = 16 \rightarrow 9 \text{ MeV}$ ist mit einer Ausbeute von 2,3 GBq/ μAh zu rechnen. Die Verunreinigungen durch ^{120m}I (4,8 %)

und ^{119}I (4,4 %) sind gering. Für die Berechnung der Verunreinigung wurde die Aktivität von $^{120\text{g}}\text{I}$ = 100 % gesetzt.

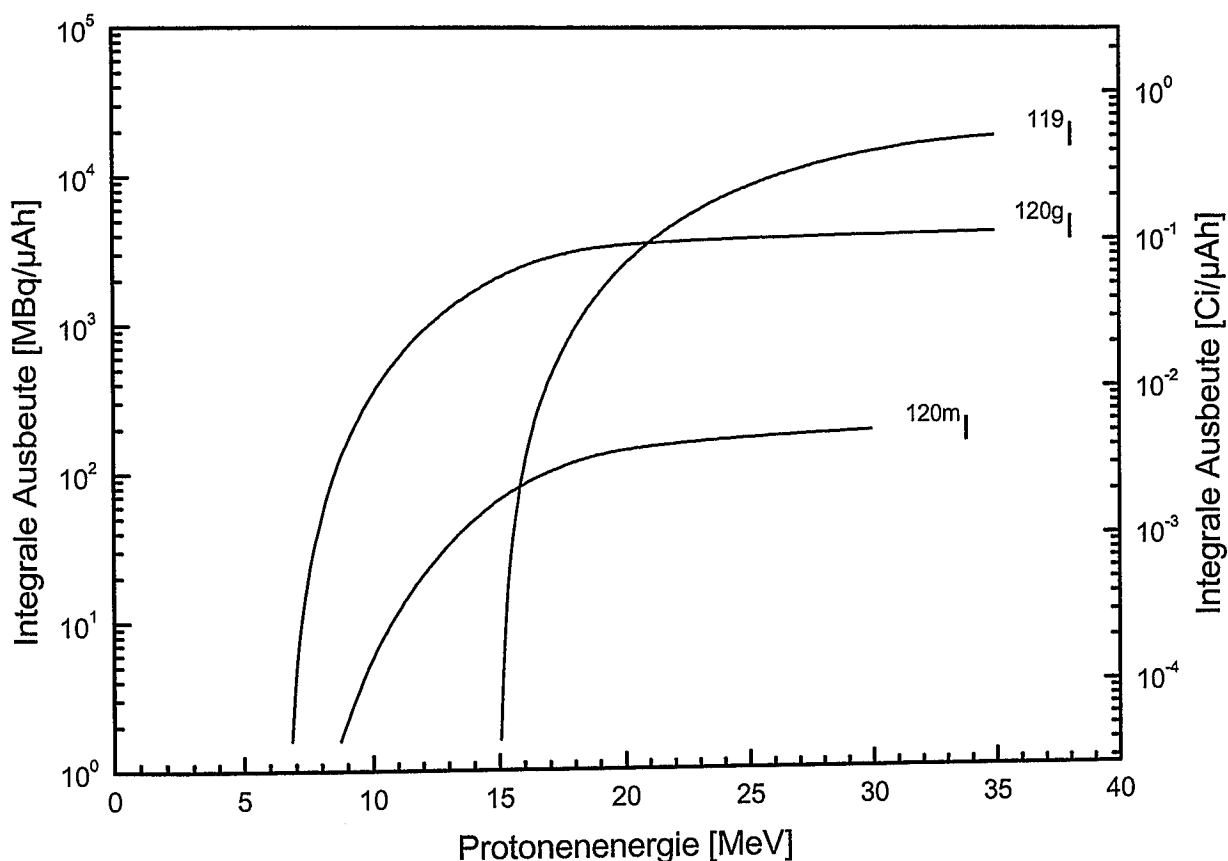


Abb. 23 Integrale Ausbeuten der $^{120}\text{Te}(p,xn)^{119,120\text{m,g}}\text{I}$ -Reaktionen, berechnet aus den Anregungsfunktionen. Die Werte beziehen sich auf eine Bestrahlungsdauer von 1 Stunde und einem Strahlstrom von 1 μA .

Für die $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120\text{m,g}}\text{I}$ -Reaktion konnte kein optimaler Energiebereich für eine Produktion angegeben werden, da das Maximum der Anregungsfunktion nicht ermittelt werden konnte. Die integralen Ausbeuten an $^{120\text{m,g}}\text{I}$ und ^{121}I (Abb. 24) wurden ebenfalls aus den entsprechenden Anregungsfunktionen berechnet. Auch hier lag eine Bestrahlungsdauer von 1 Stunde und einem Strahlstrom von 1 μA zugrunde. Im untersuchten Energiebereich $E_d = 14 \rightarrow 9 \text{ MeV}$ beträgt die Ausbeute an $^{120\text{g}}\text{I}$ 0,9 GBq/ μAh . Die Verunreinigung durch ^{121}I ist mit 68 % sehr hoch. Die Verunreinigung durch $^{120\text{m}}\text{I}$ ist mit 8,7 % etwa doppelt so hoch, wie bei der $^{120}\text{Te}(p,n)^{120\text{m,g}}\text{I}$ -Reaktion.

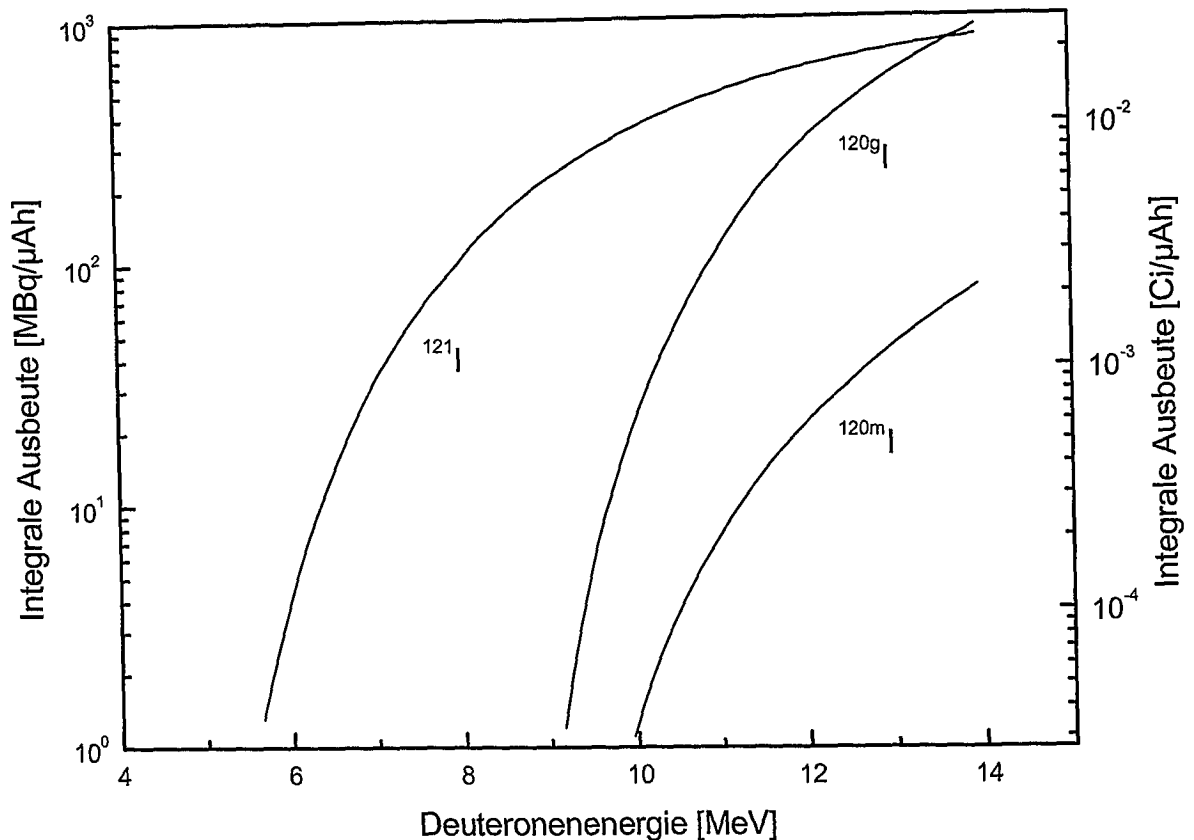


Abb. 24 Integrale Ausbeuten der $^{120}\text{Te}(\text{d},\text{xn})^{121,120\text{m},\text{g}}\text{I}$ -Reaktionen, berechnet aus den Anregungsfunktionen. Die Werte beziehen sich auf eine Bestrahlungsdauer von 1 Stunde und einem Strahlstrom von 1 μA .

5.5 Vergleichende Studie über die Reaktionen zur Produktion von $^{120\text{g}}\text{I}$

Bei einem Vergleich der verschiedenen Produktionsrouten für $^{120\text{g}}\text{I}$ (Tabelle 9) zeigt sich, daß die Reaktion $^{122}\text{Te}(\text{p},3\text{n})$ eine höhere Ausbeute an $^{120\text{g}}\text{I}$ als die $^{120}\text{Te}(\text{p},\text{n})$ -Reaktion liefert. Allerdings ist die Targetmasse mit 385 mg $^{122}\text{TeO}_2$ gegenüber 250 mg $^{120}\text{TeO}_2$ (bei einem kreisförmigen Target mit 10 mm Durchmesser) auch höher, was aber bei den wesentlich geringeren Kosten für ^{122}Te im Vergleich zu ^{120}Te keine Rolle spielt. Bezüglich einer Produktion über die $^{120}\text{Te}(\text{d},2\text{n})$ -Reaktion lassen sich keine Aussagen zur Ausbeute machen, da der optimale Energiebereich nicht untersucht werden konnte. Der Anteil von $^{120\text{m}}\text{I}$ ist bei der $^{120}\text{Te}(\text{p},\text{n})^{120\text{m},\text{g}}\text{I}$ -Reaktion mit 4,8 % deutlich geringer als bei der $^{122}\text{Te}(\text{p},3\text{n})^{120\text{m},\text{g}}\text{I}$ -Reaktion mit 25 %. Die Ursache ist in der niedrigeren Projektilenergie begründet. Mit steigender

Projektilenergie wächst auch der Anteil des Hochspin-Isomers, da ein Teil der kinetischen Energie in den Kernspin des Produktkerns umgewandelt wird [119-121]. Der Anteil von ^{120m}I bei der deutroneninduzierten Reaktion wird wahrscheinlich zwischen den beiden protoneninduzierten Reaktionen liegen. Da der Kernspin des Deuteriums größer ist als der des Protons, könnte dies bei ähnlichen Energien zu einem höheren Anteil des Hochspin-Isomers führen.

Neben ^{120m}I treten bei der protoneninduzierten Reaktion an ^{120}Te keine weiteren nennenswerten Verunreinigungen auf. Im Gegensatz dazu tritt bei den beiden anderen Reaktionen ^{121}I in größeren Mengen auf.

Tabelle 9 Vergleich verschiedener Produktionsrouten für ^{120g}I

Reaktion	Energiebereich [MeV]	Integrale Ausbeute ^{120g}I [GBq/ μAh]	Verunreinigung [%]		
			^{120m}I	^{121}I	^{119}I
$^{120}\text{Te}(\text{p},\text{n})$	16 $\rightarrow$ 9	2,3	4,8	-	4,4
$^{120}\text{Te}(\text{d},2\text{n})$	14 $\rightarrow$ 9	0,9	8,7	68	-
$^{122}\text{Te}(\text{p},3\text{n})^*$	37 $\rightarrow$ 32	3,6	25	22	6

* Die Daten sind der Literatur [58] entnommen.

5.6 Bestimmung des Positronenanteils beim Zerfall von ^{120g}I

Die Auswertung der 511 keV und 1523 keV-Linie im γ -Spektrum (Abb. 25) von ^{120g}I lieferte einen Positronen-Anteil von 58 ± 2 %. Um die Reinheit der Probe festzustellen wurde das γ -Spektrum nach Verunreinigungen untersucht. Als Verunreinigung wurde ^{121}I (1,4 %) mit einem Positronenanteil von 12 % und ^{120m}I (2,4 %) mit einem unbekannten Positronenanteil gefunden. Zur zusätzlichen Kontrolle wurde auch die Halbwertszeit von ^{120g}I durch Auswertung der 1523 keV und 511 keV-Linie bestimmt. In beiden Fällen betrug die Halbwertszeit $81,5 \pm 1,0$ min. Dieses Ergebnis bestätigt den Literaturwert von $81 \pm 0,6$ min und zeigt zudem, daß keine größere Verunreinigung durch andere Positronenstrahler vorlag.

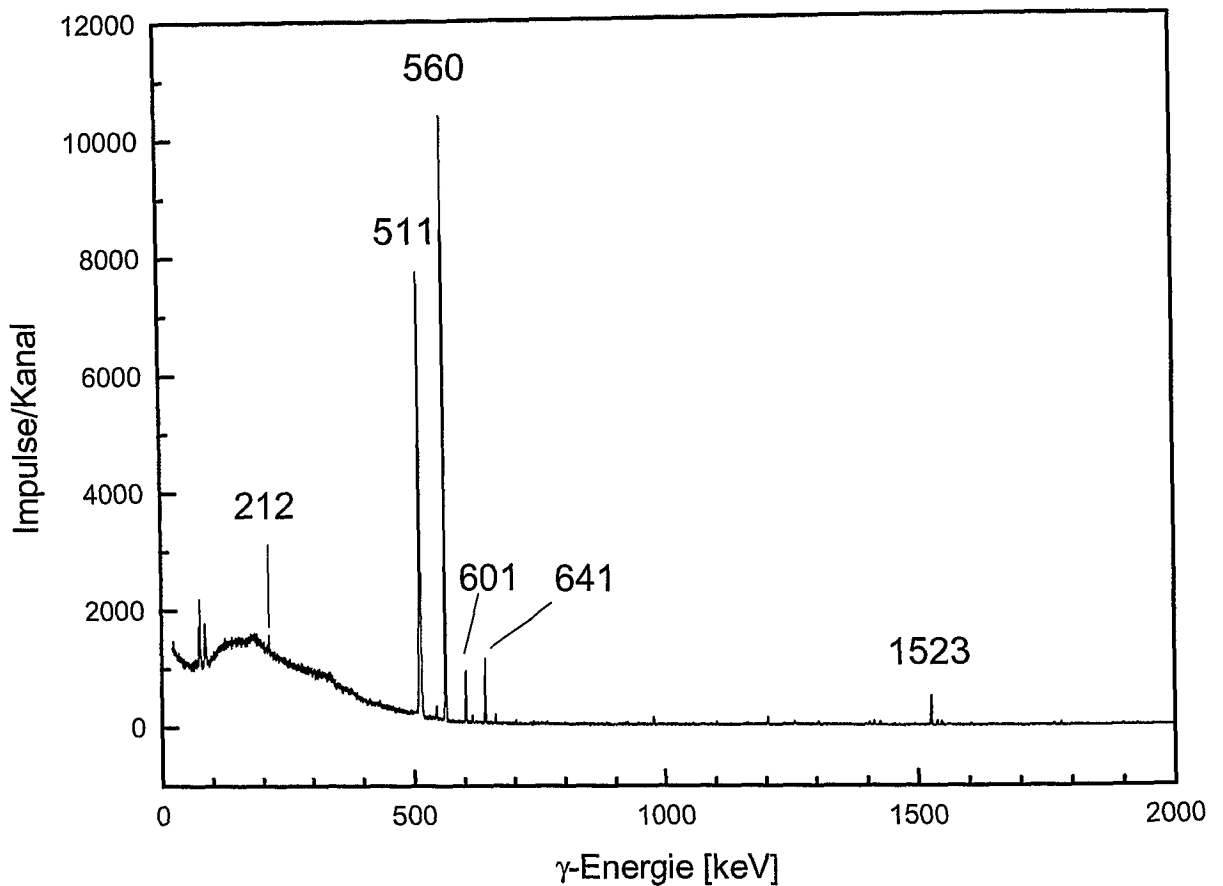


Abb. 25 γ -Spektrum von ^{120g}I nach der chemischen Abtrennung von ^{120}Te . Alle γ -Linien, außer 212 keV, konnten ^{120g}I zugeordnet werden. Die 212 keV γ -Linie wird beim Zerfall von ^{121}I beobachtet. Meßdauer: 30 Minuten. Zeitpunkt der Messung: 1 Stunde nach Bestrahlungsende

Zusätzlich zur γ -Spektrometrie wurde die ^{120g}I -Probe auch mittels Röntgenspektrometrie (Abb. 26) untersucht. Zur Bestimmung des Positronenanteils wurden die K_α und K_β -Linien des Tellurs ausgewertet. Auch bei den Röntgenspektren wurde eine Kontrolle der Halbwertszeit von ^{120g}I durchgeführt. Die gemessene Halbwertszeit betrug sowohl bei Auswertung der K_α als auch bei der K_β -Strahlung 85 min. Die Abweichung vom Literaturwert von 81 min läßt sich durch die Verunreinigung mit ^{121}I erklären. Da ^{121}I eine längere Halbwertszeit als ^{120g}I besitzt, wächst sein Anteil an der Gesamtaktivität mit der Zeit. Zusätzlich zerfällt ^{121}I zu 88 % durch EC-Zerfall. Beide Punkte zeigen, daß der Anteil an ^{121}I bei der Auswertung berücksichtigt werden

mußte. Die Auswertung der Röntgenspektren und die Berechnung des Positronenanteils beim Zerfall von ^{120}gI liefert einen Wert von 52,7 %. Da die Verunreinigungen bei der Röntgenspektrometrie einen größeren Einfluß haben, wurde bei der Berechnung des Mittelwerts eine Wichtung von 60 % γ -Spektrometrie und 40 % Röntgenspektrometrie vorgenommen. Eine Zusammenstellung der Ergebnisse ist in Tabelle 10 aufgeführt.

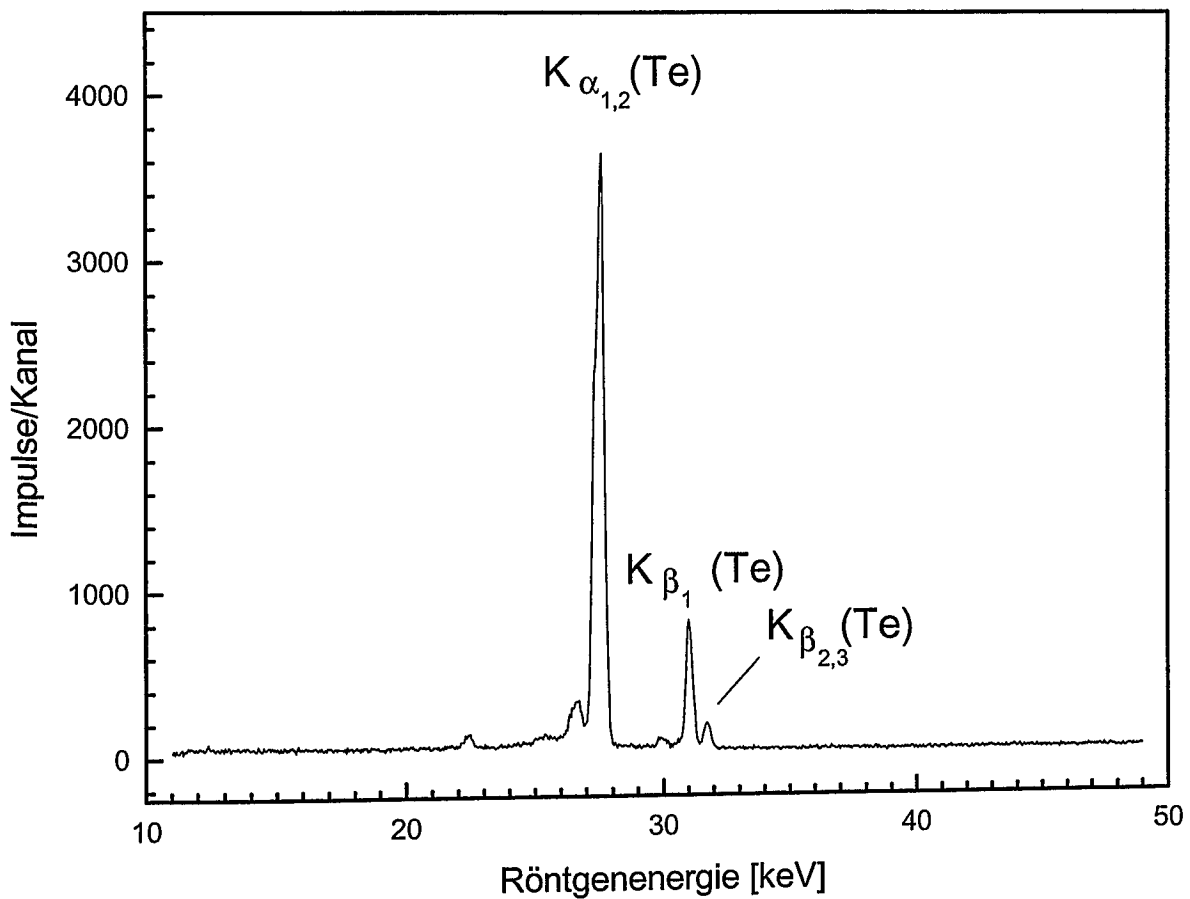


Abb. 26 Röntgenspektrum von ^{120}gI mit den K_{α} und K_{β} -Linien von Tellur.

Tabelle 10 Intensität des Positronenanteils beim Zerfall von ^{120}gI

Meßmethode	I_{β^+} (%)
γ -Spektrometrie 1523 keV γ -Linie	58,4 $\begin{smallmatrix} + 2,0 \\ - 4,0 \end{smallmatrix}$
Röntgenspektrometrie K_{α} (Te)	52,6 $\begin{smallmatrix} + 4,7 \\ - 1,6 \end{smallmatrix}$
Röntgenspektrometrie K_{β} (Te)	52,8 $\begin{smallmatrix} + 5,2 \\ - 2,3 \end{smallmatrix}$
Gewichteter Mittelwert	56,1 $\begin{smallmatrix} + 4,3 \\ - 5,6 \end{smallmatrix}$

5.7 Kernreaktionsdaten zur Produktion von ^{124}I

In dieser Arbeit wurden die $^{125}\text{Te}(\text{p},\text{xn})$ -Reaktionen untersucht. Da bei der $^{125}\text{Te}(\text{p},2\text{n})^{124}\text{I}$ -Reaktion mit den Verunreinigungen ^{125}I und ^{123}I zu rechnen war, lag der besondere Schwerpunkt der Untersuchung auf diesen Verunreinigungen. Speziell ^{125}I ist nicht einfach zu bestimmen, da es nur eine γ -Linie bei 35 keV besitzt. Bei den Bestrahlungen ist aber zusätzlich mit der Bildung von $^{125\text{m}}\text{Te}$ ($T_{1/2} = 57,4$ d) zu rechnen, das ebenfalls bei 35 keV eine starke γ -Linie besitzt. Die langen und ähnlichen Halbwertszeiten der beiden Nuklide machen es erforderlich, die $^{125\text{m}}\text{Te}$ -Aktivität aus der γ -Linie bei 109 keV ($I_{\gamma} = 0,27$ %) zu bestimmen und rechnerisch von der Gesamtaktivität zu subtrahieren. Aus diesem Grund betrug die Meßzeit der Proben zwischen 7 und 10 Tagen. Die relativ kurzlebigen Nuklide ^{119}I , $^{120\text{m,g}}\text{I}$, ^{121}I und ^{122}I wurden nur bei Bestrahlungen im National Accelerator Centre (NAC) gemessen, da hier eine schnelle Probenentnahme und sofortige Messungen möglich waren.

Die Messungen wurden erstmals durchgeführt und ihre Ergebnisse sind in Tabelle 11 und 12 aufgeführt. Eine Auftragung der Wirkungsquerschnitte gegen die Protonenenergie zeigen Abb. 27 und Abb. 28.

Tabelle 11 Wirkungsquerschnitte der $^{125}\text{Te}(p,xn)^{125,124,123,122}\text{I}$ -Reaktionen

Energie [MeV]	Wirkungsquerschnitt [mb]			
	^{125}I	^{124}I	^{123}I	^{122}I
100,5 ± 0,2	19 ± 3	28 ± 4	-	37 ± 6
90,8 ± 0,3	24 ± 4	29 ± 4	-	-
80,9 ± 0,4	22 ± 4	35 ± 5	-	41 ± 7
70,9 ± 0,5	24 ± 4	44 ± 6	-	-
68,2 ± 0,2	25 ± 4	33 ± 4	60 ± 10	-
65,2 ± 0,2	26 ± 4	45 ± 6	-	72 ± 12
64,1 ± 0,2	26 ± 4	37 ± 5	64 ± 10	-
61,0 ± 0,3	-	49 ± 6	-	78 ± 12
59,7 ± 0,3	27 ± 4	43 ± 6	82 ± 13	-
55,1 ± 0,4	32 ± 5	45 ± 6	84 ± 13	-
54,3 ± 0,4	39 ± 6	57 ± 7	-	162 ± 26
50,2 ± 0,5	33 ± 5	52 ± 7	101 ± 16	-
48,8 ± 0,5	43 ± 7	74 ± 10	206 ± 33	294 ± 47
45,3 ± 0,2	-	-	172 ± 28	-
45,2 ± 0,2	26 ± 4	67 ± 9	-	-
44,9 ± 0,2	31 ± 5	56 ± 7	134 ± 21	-
43,8 ± 0,2	41 ± 7	73 ± 9	251 ± 40	420 ± 67
42,5 ± 0,2	-	71 ± 9	-	-
39,5 ± 0,3	-	-	291 ± 47	-
39,1 ± 0,3	36 ± 6	64 ± 8	-	-
38,8 ± 0,3	42 ± 7	86 ± 11	484 ± 77	291 ± 47
38,4 ± 0,3	39 ± 6	80 ± 10	-	-
35,1 ± 0,4	38 ± 6	91 ± 12	-	-
32,5 ± 0,4	45 ± 7	92 ± 12	-	-
31,5 ± 0,4	-	-	885 ± 142	-
27,8 ± 0,5	57 ± 9	182 ± 24	-	-
26,1 ± 0,5	-	-	674 ± 108	-
25,1 ± 0,5	79 ± 13	320 ± 42	-	-
23,3 ± 0,5	-	-	292 ± 47	-
22,1 ± 0,5	67 ± 11	-	-	-
21,5 ± 0,5	-	-	38 ± 6	-
18,5 ± 0,2	74 ± 12	979 ± 127	-	-
16,1 ± 0,2	141 ± 23	922 ± 120	-	-
13,3 ± 0,3	355 ± 57	579 ± 75	-	-
10,6 ± 0,2	687 ± 110	63 ± 8	-	-
10,1 ± 0,2	578 ± 92	-	-	-
7,4 ± 0,3	224 ± 36	-	-	-
5,5 ± 0,3	18 ± 3	-	-	-

Tabelle 12 Wirkungsquerschnitte der $^{125}\text{Te}(p,xn)^{121,120m,g,119}\text{I}$ -Reaktionen

Energie MeV	Wirkungsquerschnitt [mb]			
	^{121}I	^{120g}I	^{120m}I	^{119}I
$100,5 \pm 0,2$	80 ± 10	57 ± 9	11 ± 2	36 ± 6
$90,8 \pm 0,3$	96 ± 12	67 ± 11	14 ± 3	52 ± 8
$80,9 \pm 0,4$	126 ± 16	96 ± 15	25 ± 5	78 ± 12
$70,9 \pm 0,5$	223 ± 29	178 ± 24	42 ± 8	31 ± 5
$65,2 \pm 0,2$	236 ± 31	134 ± 21	36 ± 7	27 ± 4
$61,0 \pm 0,2$	443 ± 58	82 ± 13	18 ± 3	-
$54,3 \pm 0,3$	434 ± 56	16 ± 3	$0,9 \pm 0,2$	-
$48,8 \pm 0,3$	290 ± 38	-	-	-
$43,8 \pm 0,4$	46 ± 6	-	-	-

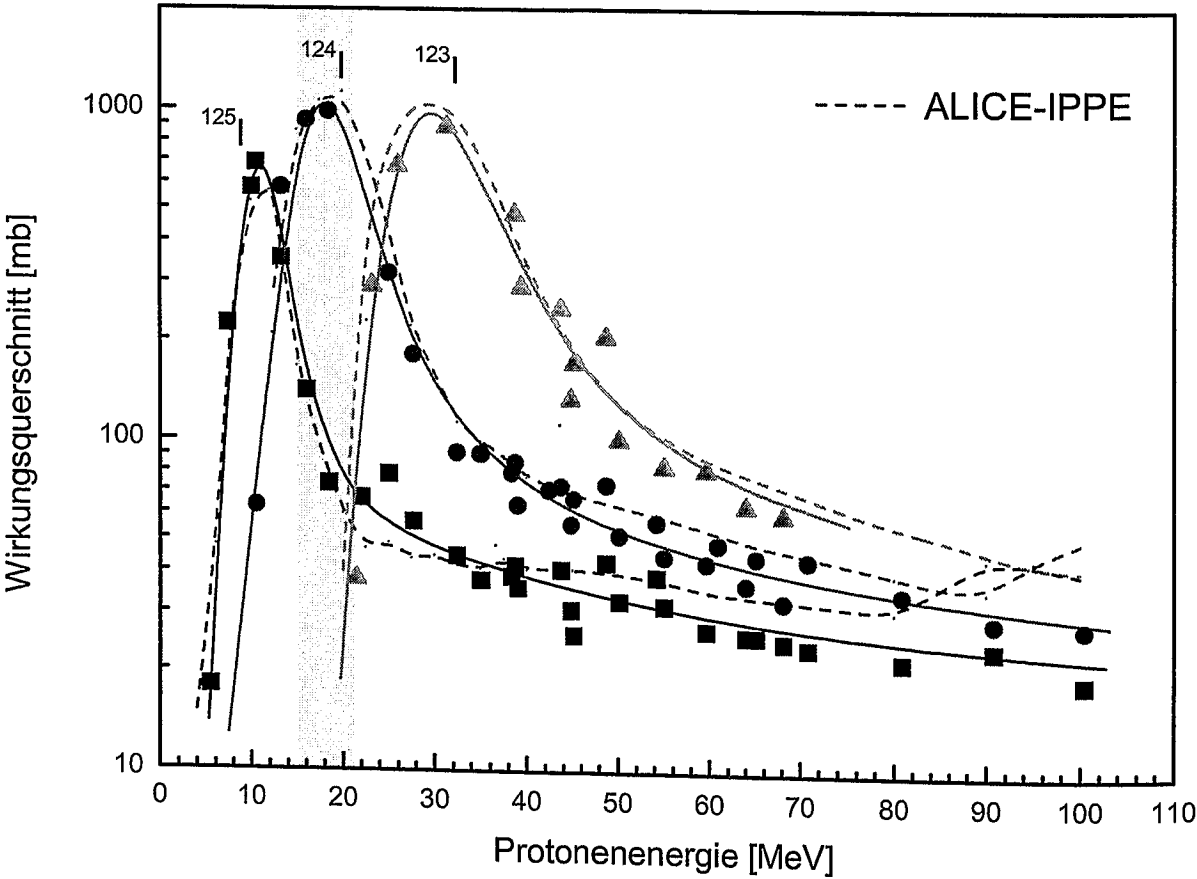


Abb. 27 Anregungsfunktionen der $^{125}\text{Te}(p,xn)^{125,124,123}\text{I}$ -Reaktionen. Die gestrichelten Linien zeigen die Ergebnisse der Berechnungen mit ALICE-IPPE. Die durchgezogenen Linien beschreiben gefittete Funktionen durch die Meßwerte.

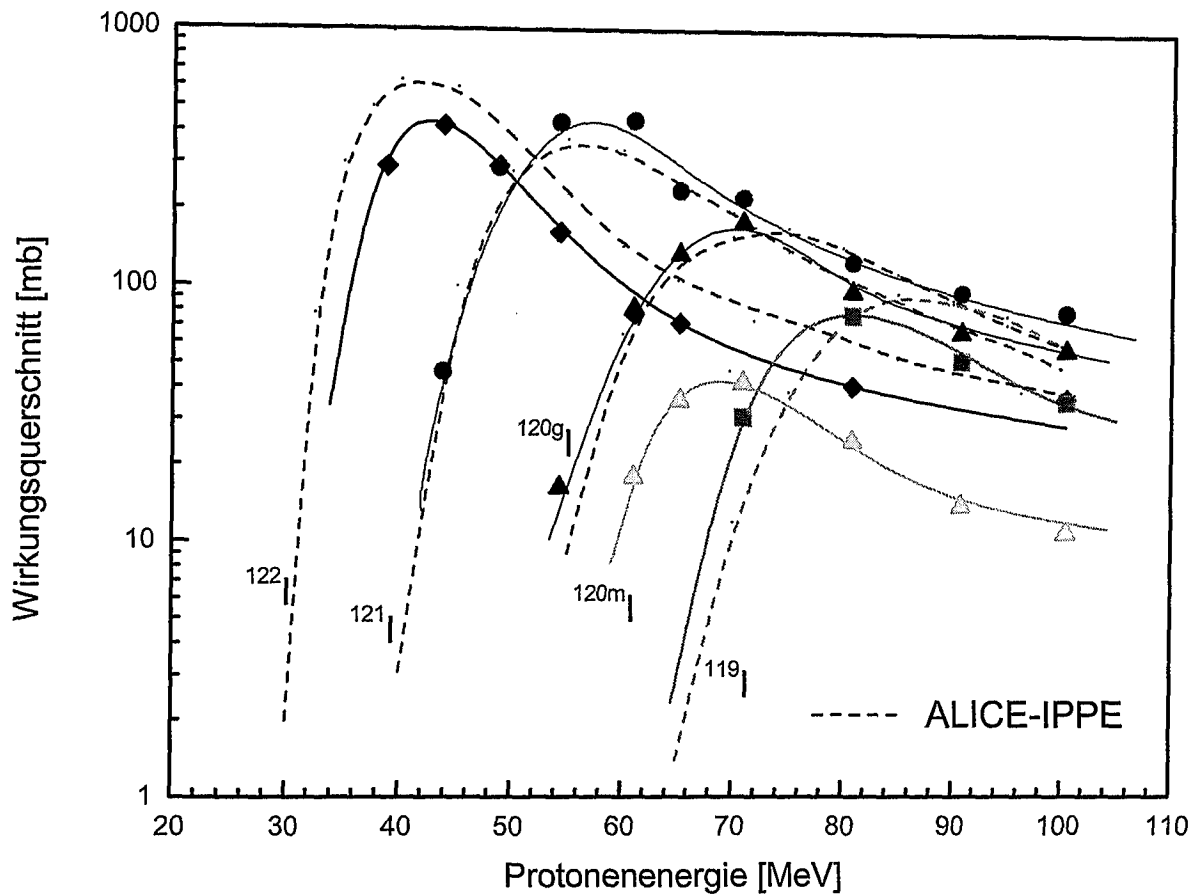


Abb. 28 Anregungsfunktionen der $^{125}\text{Te}(p,xn)^{122,121,120m,g,119}\text{I}$ -Reaktionen. Die gestrichelten Linien zeigen die Ergebnisse der Rechnungen mit ALICE-IPPE. Die durchgezogenen Linien beschreiben gefittete Funktionen durch die Meßwerte.

5.7.1 Kernmodellrechnungen der protoneninduzierten Reaktionen an ^{125}Te

Auch hier stimmen die Ergebnisse der Modellrechnungen mit den experimentellen Daten weitgehend überein (Abb. 27 und Abb. 28). Eine deutliche Abweichung tritt bei ^{119}I auf, allerdings waren hier auch nur wenige Messungen möglich.

5.7.2 Integrale Ausbeuten protoneninduzierter Reaktionen an ^{125}Te

Die integralen Ausbeuten wurden aus den Anregungsfunktionen berechnet und sind in Abb. 29 und Abb. 30 graphisch dargestellt. Wie erwartet ist die Ausbeute an ^{124}I bei dieser Reaktion höher als bei allen anderen bekannten Produktionsrouten. Für eine Produktion von ^{124}I würde sich ein Energiebereich von $21 \rightarrow 15 \text{ MeV}$ anbieten. Bei Bestrahlungsende ist mit einer Ausbeute an ^{124}I von $81 \text{ MBq}/\mu\text{Ah}$ zu rechnen. Die Verunreinigungen in diesem Bereich sind ^{123}I (7,4 %) und ^{125}I (0,9 %). Eine Verschiebung des Produktionsbereiches zu niedrigeren Energien würde den Anteil an ^{125}I nur unnötig erhöhen.

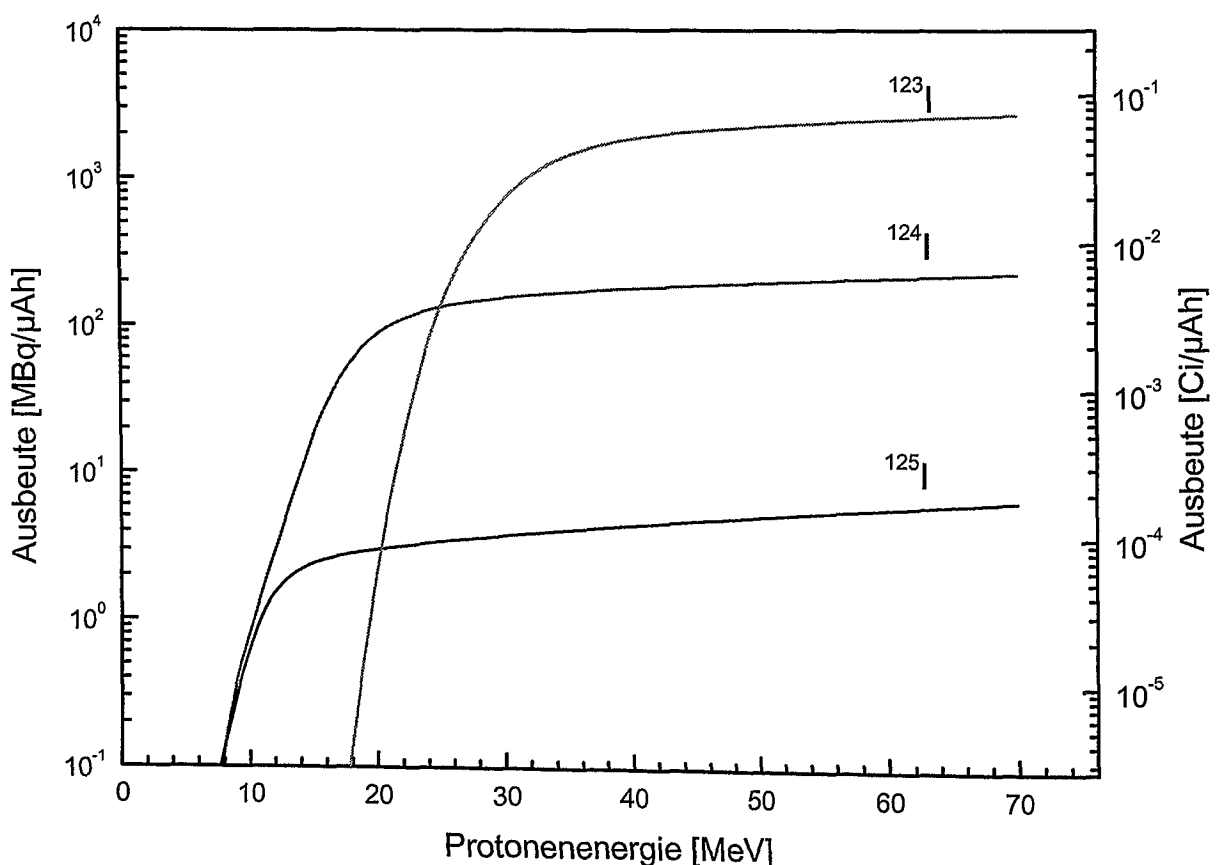


Abb. 29 Integrale Ausbeuten der $^{125}\text{Te}(\text{p},\text{xn})^{125,124,123}\text{I}$ -Reaktionen. Die Angaben beziehen sich auf eine Bestrahlungsdauer von 1 Stunde und einem Strahlstrom von $1\mu\text{A}$.

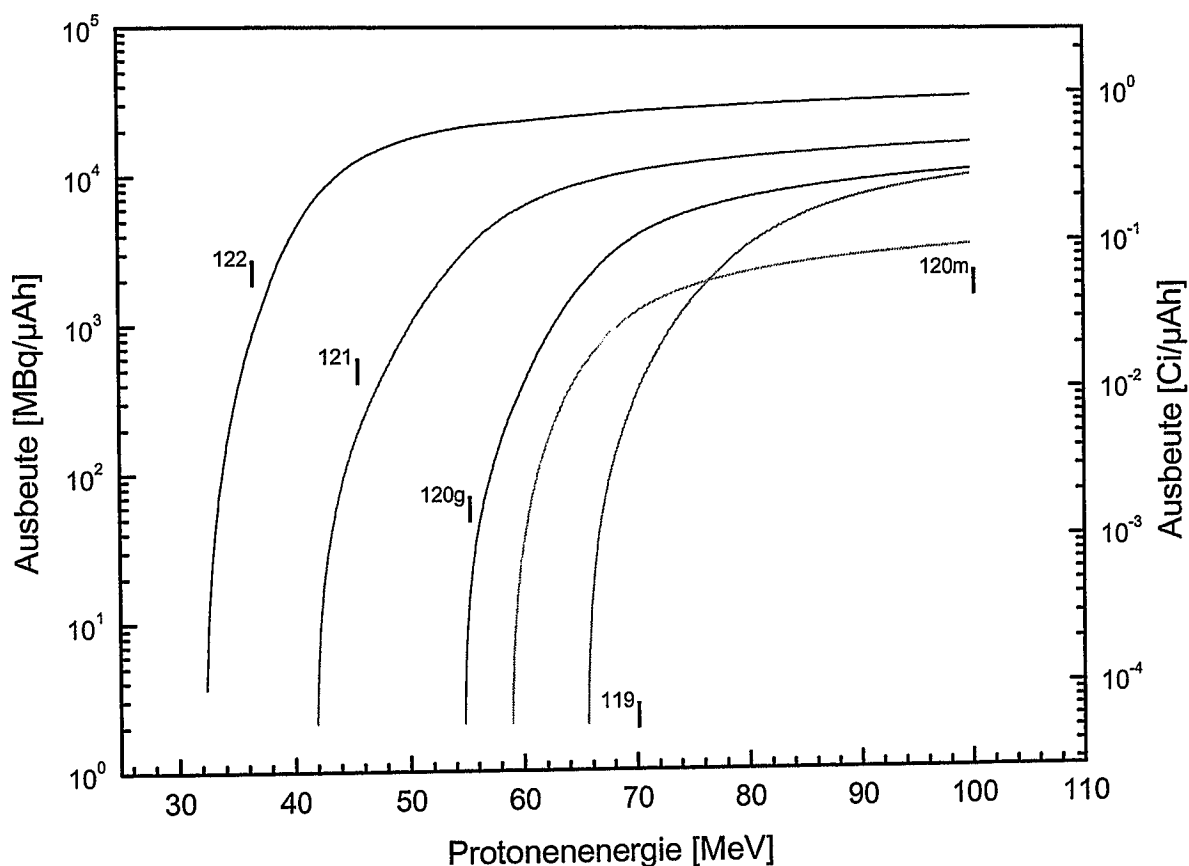


Abb. 30 · Integrale Ausbeuten der $^{125}\text{Te}(p,xn)^{122,121,120g,120m,119}\text{I}$ -Reaktionen. Die Ausbeuten beziehen sich auf eine Bestrahlungszeit von 1 Stunde und einem Strahlstrom von 1 μA .

Tabelle 13 Vergleich verschiedener Kernreaktionen zur Produktion von ^{124}I

Reaktion	Optimaler Energiebereich [MeV]	Ausbeute ^{124}I [MBq/ μAh]	Verunreinigungen [%]
$^{124}\text{Te}(p,n)$ [77]	13 $\rightarrow$ 9	20	^{123}I (41)
	12 $\rightarrow$ 8	16	^{123}I (1)
$^{124}\text{Te}(d,2n)$ [69]	15 $\rightarrow$ 8	19	$^{125,126,131}\text{I}$ (0,8)
$^{124}\text{Te}(d,2n)$ [68]	15 $\rightarrow$ 0	20	$^{123,125}\text{I}$ (?), ^{126}I (0,5)
$^{124}\text{Te}(d,2n)$ [71]	16 $\rightarrow$ 6	24	^{123}I (42), $^{125,126}\text{I}$ (?)
$^{125}\text{Te}(p,2n)^*$	21 $\rightarrow$ 15	81	^{123}I (7,4), ^{125}I (0,9)
	21 $\rightarrow$ 17	57	^{123}I (10), ^{125}I (0,7)
$^{126}\text{Te}(p,3n)$ [81]	36,8 $\rightarrow$ 33,6	67	$^{125,126}\text{I}$ (?)

* Diese Arbeit

Im Vergleich zu anderen Produktionsrouten (Tabelle 13) liefert die $^{125}\text{Te}(p,2n)^{124}\text{I}$ -Reaktion die höchste Ausbeute an ^{124}I . Die $^{126}\text{Te}(p,3n)^{124}\text{I}$ -Reaktion liefert ähnlich hohe Ausbeuten, aber hier tritt neben ^{125}I auch ^{126}I als Verunreinigung auf. Leider ist der Anteil dieser Verunreinigungen bisher nicht untersucht worden. Gleiches gilt auch für die $^{124}\text{Te}(d,2n)^{124}\text{I}$ -Reaktion. Der Anteil von ^{125}I dürfte jedoch nicht unter dem Wert der $^{125}\text{Te}(p,2n)$ -Reaktion liegen. Die $^{125}\text{Te}(p,2n)$ -Reaktion ist daher eine gute Alternative für Zentren, die über ein Kompaktzyklotron verfügen. An einem kleinen Zyklotron und völlig ohne ^{125}I -Verunreinigung läßt sich ^{124}I nur über die $^{124}\text{Te}(p,n)$ -Reaktion an hoch angereichertem ^{124}Te produzieren.

5.8 Chemische Trennung des Radioiods vom Targetmaterial

Zu Produktionszwecken wurde hochangereichertes $^{120}\text{TeO}_2$, $^{122}\text{TeO}_2$ und $^{124}\text{TeO}_2$ auf Platin bestrahlt. Bei der nachfolgenden Abtrennung des Radioiods wurden sowohl die naßchemische als auch trockene Destillation untersucht.

Bei der trockenen Destillation wurde TeO_2 über den Schmelzpunkt von 733°C erhitzt und das Radioiod mit einem Trägergas in eine Vorlage von 0,1 m Natronlauge überführt. Ziel der Untersuchungen war es, den Einfluß von Temperatur, Trägergas, Ausheizzeit und Bauform der Apparatur zu bestimmen. Die ersten Experimente erfolgten mit inaktiven TeO_2 -Proben mit der bereits erwähnten Induktionsapparatur. Die Temperaturmessung wurde mit einem Thermoelement durchgeführt. Da nicht ausgeschlossen werden konnte, daß die Induktionsspule die Temperaturmessung beeinflusst und da zwischen Target und Thermoelement eine räumliche Distanz bestand, mußte die Temperaturmessung geeicht werden. Dazu wurden auf gleiche Platinhalter wie bei den TeO_2 -Proben verschiedene Verbindungen mit ähnlichen Schmelztemperaturen (NaI : 662°C , KI : 723°C , KBr : 732°C , NaBr : 755°C , KCl : 776°C) aufgebracht und langsam bis zur jeweiligen Schmelztemperatur erwärmt.

In der Literatur wird oft reiner Sauerstoff als Trägergas empfohlen, da die Bildung von Iodoxiden als Transportmechanismus vermutet wird. Um den Einfluß des Trägergases zu untersuchen wurden Experimente mit Helium, Argon, Stickstoff, Sauer-

stoff und Luft durchgeföhrt. Das Radioiod wurde ohne Unterschied mit allen untersuchten Gasen transportiert, was gegen den postulierten Transportmechanismus spricht. Ein weiteres Indiz gegen diesen Transportmechanismus ist die thermische Stabilität der Iodoxide, die sich alle oberhalb von 300 °C zersetzen. Außerdem sollte man erwarten, daß sich das Radioiod in der Vorlage als Iodat sammelt. In der Literatur ist aber beschrieben, daß das Radioiod zu mehr als 90 % als Iodid vorliegt. Der Verlust an TeO_2 war bei reinem Sauerstoff dreimal höher als bei allen anderen Gasen. Die Ursache könnte in der partiellen Bildung von TeO_3 liegen, welches sich oberhalb von 400°C wieder in TeO_2 und O_2 zersetzt. Wie nicht anders zu erwarten, wuchs der Verlust an Targetmaterial mit steigender Temperatur rapide an (Abb. 31). Die besten Ausbeuten wurden erreicht, indem das Trägergas durch die Apparatur gesaugt wurde. Das Target wurde 15 Minuten bei einer Temperatur von 750°C gehalten. Danach wurde das Target entfernt und die Röhre für eine halbe Stunde auf 850°C erhitzt.

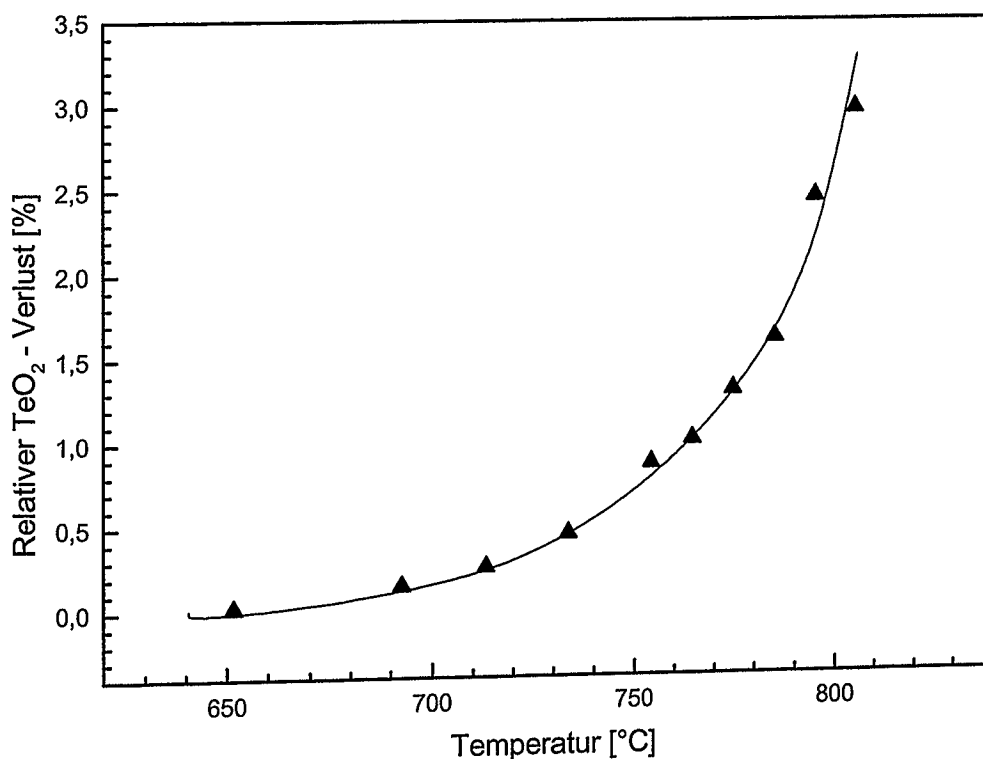


Abb. 31 Relativer Verlust an Targetmaterial als Funktion der Ausheiztemperatur. Bei den Versuchen wurden die Proben jeweils 30 min im Argonstrom erhitzt.

Um die Vorteile einer konventionellen Apparatur (Temperatur steigt von innen nach außen; einfache Konstruktion) und einer Induktionsapparatur (schnelle Temperaturerhöhung) zu kombinieren, wurde eine bereits beschriebene neue Apparatur konstruiert. Bei dieser Apparatur läßt sich die Spannung über einen Trafo frei zwischen 0 und 250 V einstellen. Bei einer Spannung von 90 V wurde die benötigte Temperatur von 750 °C innerhalb 4 Minuten erreicht. Die Zeitspanne war damit die gleiche, wie bei der Induktionsapparatur und lag deutlich unter der eines konventionellen Röhrenofens von ca. 15 Minuten.

5.9 Produktion von ^{120}gI und ^{124}I in MBq-Mengen

Für Phantommessungen und für Abtrennungsversuche wurde mehrfach ^{120}gI und ^{124}I in MBq-Mengen produziert. Die Produktion von ^{120}gI erfolgte über die Reaktionen $^{122}\text{Te}(p,3n)^{120\text{m,gI}}$ und $^{120}\text{Te}(p,n)^{120\text{m,gI}}$. Bei der ersten Reaktion wurden 50 mg $^{122}\text{TeO}_2$ mit 35 MeV Protonen bestrahlt. Das Radioiod wurde auf naßchemischen Weg abgetrennt. Die Ausbeute (Tabelle 14) betrug etwa 50 – 60 % der theoretischen Ausbeute. Bei der zweiten Reaktion wurde 30 mg $^{120}\text{TeO}_2$ mit 15 MeV Protonen bestrahlt. Die Abtrennung von $^{120\text{m,gI}}$ erfolgte durch trockene Destillation mit einer Ausbeute von 19 und 27 %. Die relativ schlechte Ausbeute der (p,n)-Reaktion im Vergleich zur (p,3n)-Reaktion läßt sich dadurch erklären, daß aus Rücksicht auf die hohen Targetkosten bei relativ niedriger Temperatur und kurzer Destillationszeit gearbeitet wurde.

Tabelle 14 Ausbeute einiger Bestrahlungen zur Produktion von ^{120}gI

Targetmasse	Strahl- strom [μA]	Bestrah- lungsdauer [min]	Gesamte exp. Ausbeute [MBq]	Relative exp. Ausbeute [MBq/μAh]	Theoretische Ausbeute [MBq/μAh]
50 mg $^{122}\text{TeO}_2$	0,5	120	192	192	303
47 mg $^{122}\text{TeO}_2$	1	90	226	151	289
30 mg $^{120}\text{TeO}_2$	5	80	350	53	193
30 mg $^{120}\text{TeO}_2$	5	90	253	36	193

Zur Produktion von ^{124}I wurde nur die $^{124}\text{Te}(\text{p},\text{n})^{124}\text{I}$ -Reaktion herangezogen. Es wurden 100 - 168 mg $^{124}\text{TeO}_2$ mit 15 MeV Protonen bestrahlt. Bei einem Vergleich der relativen Ausbeute (Tabelle 15) fällt auf, daß der Wert bei allen Experimenten unabhängig von der Targetmasse relativ konstant bei 3 - 4.5 MBq/ μAh liegt. Eine Erklärung könnte darin bestehen, daß Radioiod in tieferen Schichten des Targets während des Destillationsprozesses nicht an die Targetoberfläche gelangen kann und so im Target verbleibt. Weiter fällt auf, daß die relative Ausbeute bei höheren Strahlströmen abnimmt. Möglicherweise wird bei diesen Strahlströmen ein Teil des Radioiods während der Bestrahlung mit dem Heliumstrom abgeführt. Versuche, dies mit nachgeschaltetem Aktivkohlefilter zu beweisen, blieben allerdings erfolglos.

Tabelle 15 Ausbeute einiger Bestrahlungen zur Produktion von ^{124}I

Targetmasse $^{124}\text{TeO}_2$ [mg]	Strahl- strom [μA]	Bestrah- lungsdauer [min]	Gesamte exp. Ausbeute [MBq]	Relative exp. Ausbeute [MBq/ μAh]	Theoretische Ausbeute [MBq/ μAh]
100	5	180	66,6	4,4	8,1
105	11	85	62,9	4,1	8,5
153	13	120	96,2	3,7	14,1
150	13	200	170	4,1	13,7
168	15	300	167	2,2	15,5
159	13	340	226	3,0	14,4
148	10	300	154	3,0	13,3

5.10 Phantommessungen

Ziel von Phantommessungen ist es, neue Radionuklide auf ihre Eignung für SPECT- oder PET-Untersuchungen zu testen. Von besonderem Interesse bei dieser Arbeit waren Phantommessungen von ^{120g}I . Die Messungen wurden an einem Scanditronix PC4096-15WB Ganzkörper PET-Scanner durchgeführt [34]. Folgende Einflüsse auf die PET-Messung wurden untersucht:

Positronenenergie

Beim Zerfall von ^{120g}I entstehen Positronen mit verschiedenen Energien. Erst wenn sie ihre gesamte kinetische Energie durch Stöße mit der Umgebung abgegeben haben, können sie mit Elektronen zerstrahlen. Daher ist der Weg, den sie von der Entstehung bis zur Vernichtung zurücklegen, annähernd proportional zur Positronenenergie. Eine höhere Positronenenergie bedeutet daher eine geringere Auflösung.

γ -Linien

Der PET-Scanner registriert ein positives Ereignis, wenn zwei in Koinzidenz geschaltete Detektorkristalle innerhalb der Koinzidenzzeit ansprechen. Da neben der Vernichtungsstrahlung von 511 keV auch andere γ -Strahlung freigesetzt wird, kann es auch zu einer zufälligen Koinzidenz kommen. Um die Störung durch zufällige Koinzidenz zu verringern, wird bei der Messung ein Energiefenster eingestellt, welches nur γ -Strahlung innerhalb dieses Fensters registriert. Standardmäßig war das Energiefenster auf 300-700 keV eingestellt, um eine vernünftige Ansprechwahrscheinlichkeit zu erzielen. Leider besitzen ^{120m}I und ^{120g}I in diesem Energiebereich ihre stärksten γ -Linien.

Verunreinigung durch andere Iodnuklide

Bei der Produktion von ^{120g}I entstehen auch immer Verunreinigungen durch andere Positronenemitter, wie z.B. ^{119}I , ^{120m}I oder ^{121}I . Wie störend sich diese Nuklide auf die Messung auswirken sollte durch vergleichende Messungen von ^{120g}I , welches über den $^{122}\text{Te}(p,3n)$ - und über den $^{120}\text{Te}(p,n)$ -Prozeß produziert wurde, untersucht werden.

Für die Phantommessungen standen eine ganze Reihe von Phantomen zur Verfügung. In dieser Arbeit wurden die folgenden drei Phantome genutzt:

Linienquelle

Hierbei handelt es sich um das einfachste Phantom. Es besteht aus einer Kanüle, die mit einer ^{120}gI -Lösung gefüllt und in einem Plexiglashalter fixiert wird. Mit Hilfe dieses Phantoms können grundlegende Einstellungen des PET-Scanners (wie z.B. das Energiefenster oder die Koinzidenzzeit) ermittelt werden.

Zwei-Kammer-Phantom

Bei diesem Phantom handelt es sich um ein ovales Phantom mit einer inneren und einer äußeren Kammer. Diese Kammern sollen die weiße und die graue Hirnsubstanz simulieren. Zusätzlich befinden sich im oberen und unteren Teil des Phantoms zwei Kanülen. Während der Messung wurde eine Kanüle mit Aktivität gefüllt um so einen Hot-Spot zu simulieren. Das Aktivitätsverhältnis der Lösungen in der inneren Kammer zur äußeren Kammer betrug etwa 3:1. Eine ^{120}gI -PET-Aufnahme mit diesem Phantom ist in Abb. 32 dargestellt. Die Halbwertbreite des Hot-Spots im 2-Kammer-Phantom maß bei der Aufnahme von ^{120}gI 9 mm. Vergleichbare Messungen mit ^{18}F ergaben Halbwertbreiten von 7 mm. Dieses Resultat ist etwas überraschend, da die Positronenenergien von ^{120}gI mit 3817 keV (37 %) und 4378 keV (19 %) (s. Tabelle 2) etwa das sechsfache der Positronenenergie von ^{18}F (633 keV, 97 %, s. Tabelle 1) betragen. Die ^{124}I -PET-Aufnahmen waren vergleichbar mit ^{18}F -PET-Aufnahmen. PET-Aufnahmen von ^{120}gI , welches über die $^{122}\text{Te}(\text{p},3\text{n})$ - und $^{120}\text{Te}(\text{p},\text{n})$ -Reaktion gewonnen wurde, zeigten keinen Unterschied in der Auflösung. Die Verunreinigungen der $^{122}\text{Te}(\text{p},3\text{n})$ -Reaktion stellen für PET-Aufnahmen also kein Problem dar. Mit Rücksicht auf die Strahlenbelastung der Patienten ist dennoch die $^{120}\text{Te}(\text{p},\text{n})$ -Reaktion vorzuziehen. Mit Hilfe dieser Phantomaufnahmen konnte gezeigt werden, daß ^{120}gI durchaus ein guter Positronenemitter für PET ist und daß in Zukunft wohl einige Anwendungen folgen werden.



Abb. 32 ^{120}gI -PET-Aufnahme des 2-Kammer-Phantoms zur Simulation der weißen und grauen Hirnsubstanz. Der Hot-Spot in der unteren Bildhälfte ermöglicht die Auflösung verschiedener Positronenemitter zu vergleichen

Hoffman-Phantom

Dieses Phantom (Abb. 33) simuliert ebenfalls die weiße und graue Hirnsubstanz. Im Gegensatz zum Zwei-Kammer-Phantom besteht dieses Phantom nur aus einer Kammer. Die Darstellung der beiden Hirnsubstanzen wird durch unterschiedliche Ausdehnungen in axialer Richtung der Windungen erreicht. Das Hoffman-Phantom liefert realistische Bilder, wie man sie bei in-vivo Aufnahmen des Hirns erwartet.

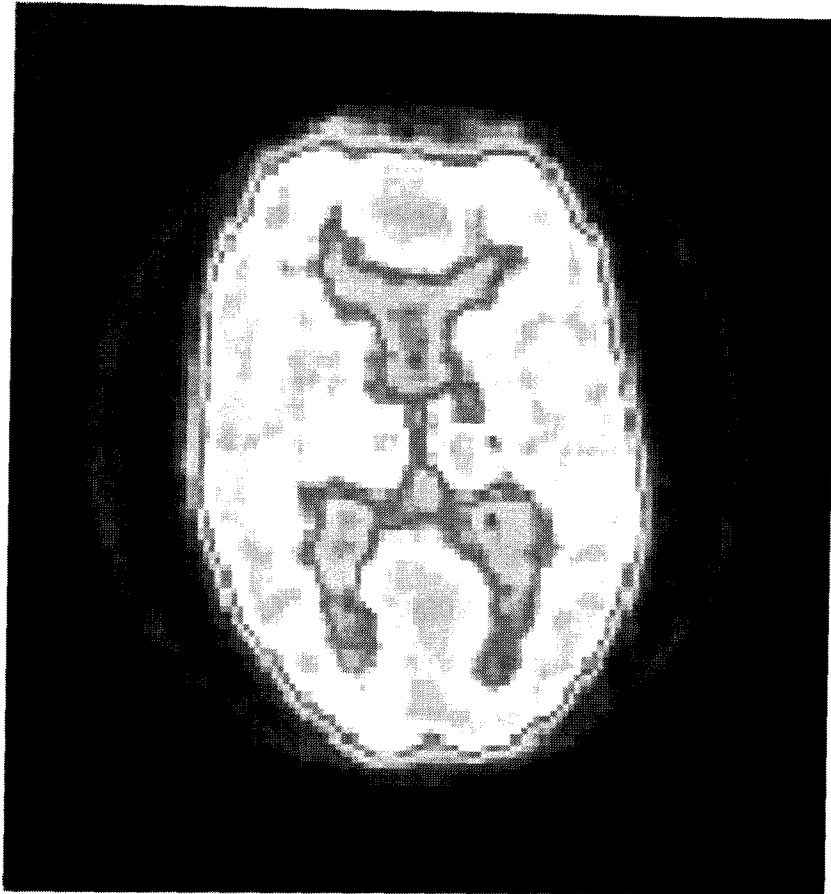


Abb. 33 ^{120}gI -PET-Aufnahme des 3D-Hoffman-Phantom

Die Phantommessungen wurden in Zusammenarbeit mit Herrn Dr. H. Herzog aus dem Institut für Medizin (IME) des Forschungszentrums Jülich durchgeführt.

5.11 Markierung von 4-Methoxy-N-methylbenzamid und Methyltyrosin

Um die Qualität des abgetrennten Radioiods zu überprüfen, wurden Markierungen von 4-Methoxy-N-methylbenzamid und Methyltyrosin mit ^{120}gI , ^{124}I und käuflichem ^{131}I durchgeführt.

Die Markierungen von 4-Methoxy-N-methylbenzamid lieferten das gewünschte Produkt mit einer radiochemischen Ausbeute von 70 %, was auch dem Literaturwert [97] entspricht.

Die Markierungen von Methyltyrosin erfolgten unabhängig vom Iodnuklid mit einer Radiochemischen Ausbeute von 78 - 83 % (Literatur: 85 ± 5 %). Die Identifizierung erfolgte nach Trennung über HPLC durch Vergleich der Retentionszeiten der aktiven Bestandteile mit den jeweils entsprechenden inaktiven Standardverbindungen, welche nach Krummeich et al. [98] hergestellt wurden.

Neben den gewünschten Markierungsprodukte wurde nur freies Iodid, aber keine weiteren Markierungsprodukte gefunden.

6 Zusammenfassung

Der Einsatz von Radioiod in der Nuklearmedizin hat eine lange Tradition. Der erste größere Einsatz von Radioiod bestand in der Untersuchung der Schilddrüse. Heute werden allerdings viele Schilddrüsenuntersuchungen, mit Ausnahme von Stoffwechseluntersuchungen, mit ^{99m}Tc durchgeführt. Zur Therapie von Schilddrüsenerkrankungen wird aber bis heute ^{131}I eingesetzt, da hier ein Teilchenstrahler benötigt wird. Neben der Therapie werden heute eine Reihe von Iodnukliden für in-vitro (RIA) und in-vivo (SPECT) Untersuchungen eingesetzt. Der große Vorteil von Iodmarkierungen liegt darin begründet, daß Iod annähernd isoster zu einer Methylgruppe ist. Daher tolerieren biologische Systeme sehr häufig Iodmarkierungen, besonders dann, wenn sie weit von den bioreaktiven Molekülregionen entfernt sind. Ein anderer Vorteil von Iod liegt in der einfachen und vielfältigen Chemie.

Wird ^{123}I schon lange für SPECT eingesetzt, so gibt es bis heute nur wenige iodmarkierte Verbindungen für PET, obwohl auch hier ein großes Interesse besteht. Von allen Iodnuklide sind aber nur ^{120g}I ($T_{1/2} = 81 \text{ min}$) und ^{124}I ($T_{1/2} = 4,18 \text{ d}$) bezüglich Halbwertszeit und Positronenanteil für PET geeignet. In dieser Arbeit wurde erstmals die Produktion von ^{120g}I über die $^{120}\text{Te}(p,n)^{120m,g}\text{I}$ -Reaktion untersucht. Diese Reaktion bietet die Möglichkeit ^{120g}I mit der höchsten nuklidischen und isomeren Reinheit herzustellen. Im Vergleich zu der $^{122}\text{Te}(p,3n)^{120m,g}\text{I}$ -Reaktion liefert sie ^{120g}I vergleichbarer Ausbeute, allerdings ohne Verunreinigung durch ^{121}I . Auch der Anteil an ^{120m}I liegt mit weniger als 5 % sehr niedrig. Ein weiterer Vorteil der (p,n)-Reaktion ist die Produktionsmöglichkeit an einem kleinen Zyklotron. Aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit ist ein Transport über weite Entfernungen nicht sinnvoll. Da aber viele PET-Zentren über ein eigenes kleines Zyklotron verfügen, ist die (p,n)-Reaktion ideal zur Produktion im eigenen Haus.

Die hohe Reinheit des produzierten ^{120g}I über den (p,n)-Prozeß erlaubte die genaue Bestimmung des Positronenanteils beim Zerfall. In der Literatur wurden Werte zwischen 39 und 81 % angegeben. Der Grund für diese Ungenauigkeit liegt in der Produktion des ^{120g}I über Schwerionen- oder Hochenergiereaktionen. In allen Fällen war

^{120g}I stark mit anderen Positronenstrahlern verunreinigt, welche die Bestimmung des Positronenanteils erschweren. In dieser Arbeit wurde der Positronenanteil durch γ -Spektrometrie und Röntgenspektrometrie bestimmt. Der gewichtete Wert von 56 % für den Positronenanteil liegt damit ziemlich genau in der Mitte der verschiedenen Literaturwerte.

Die Produktion von ^{124}I erfolgt heute ausschließlich über den $^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$ - oder $^{124}\text{Te}(d,2n)^{124}\text{I}$ -Prozeß. In dieser Arbeit wurde der alternative $^{125}\text{Te}(p,2n)^{124}\text{I}$ -Prozeß erstmals untersucht. Dabei konnte gezeigt werden, daß dieser Prozeß eine höhere Ausbeuten an ^{124}I liefert als die bisher genutzten Kernreaktionen. Der Anteil der ^{125}I -Verunreinigung ist mit weniger als 1 % erfreulich gering. Die Verunreinigung durch ^{123}I (< 10 %) kann vernachlässigt werden, da die Halbwertszeit deutlich geringer ist als bei ^{124}I . Für PET-Zentren, die über ein Zyklotron mit 21 MeV Protonen verfügen, ist diese Reaktion ideal.

Zusätzlich zu den Kerndatenmessungen wurden auch Kernmodellrechnungen mit den Codes ALICE-IPPE und STAPRE durchgeführt. Erstes benutzt das Hybridmodell für den Precompoundanteil und die Weisskopf-Ewing-Verdampfung für den Compoundkernanteil. Zweites basiert auf dem Hauser-Feshbach-Formalismus. Die Ergebnisse der Rechnungen mit ALICE-IPPE stimmten weitgehend mit den experimentell ermittelten Werten überein. Da mit ALICE-IPPE keine Isomerenverhältnisse berechnet werden können, wurde die $^{120}\text{Te}(p,n)^{120m,g}\text{I}$ -Reaktion und die $^{120}\text{Te}(d,2n)^{120m,g}\text{I}$ -Reaktion zusätzlich mit STAPRE berechnet. Da die Energieniveaus mit ihrem Spin und Parität der benötigten Kerne nicht genau bekannt waren, wurden zur Berechnung ähnliche Kerne eingesetzt. Bei der Berechnung des Isomerenverhältnisses $^{120m}\text{I}/^{120g}\text{I}$ wurde die größte Übereinstimmung erzielt bei einem Spin von 4 (+) für den metastabilen Zustand. Aus der Literatur war bisher nur ein Wert zwischen 4 und 8 bekannt. Die Energiedifferenz zwischen metastabilen Zustand und Grundzustand ist in der Literatur mit 900 keV angegeben. Die STAPRE-Rechnungen lieferten allerdings, in Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Anregungsfunktionen, einen Wert von 550 keV.

Zur Abtrennung des Radioiods vom bestrahlten Targetmaterial ist heute die trockene Destillation üblich. Mit einer neuen Apparatur konnte die Schmelztemperatur des

TeO₂ von 733°C innerhalb von 4 min erreicht werden. Um die Qualität des abgetrennten Radioiods zu prüfen wurden zwei Markierungsexperimente durchgeführt. Die radiochemischen Ausbeuten entsprachen dabei denen in der Literatur.

Ein Teil des abgetrennten ¹²⁰I wurde für Phantommessungen verwendet. Die Messungen ergaben, daß die relativ hohen Positronenenergien von ^{120g}I die Auflösung nicht so verschlechtert, wie vorher befürchtet. Die Eignung von ^{120g}I für PET konnte mit den Phantommessungen gezeigt werden.

7 Literatur

- [1] N. Bohr, Neutron capture and nuclear constitution, *Nature* **137**, 344 (1936).
- [2] V. Weißkopf, D. H. Ewing, On the yield of nuclear reactions with heavy elements, *Phys. Rev.* **57**, 472 (1940).
- [3] E. Gadioli, P. E. Hodgson, Pre-equilibrium Nuclear Reactions, Clarendon, Oxford (1992).
- [4] H. Bethe, Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie, *Ann. Physik*, **5**, 325 (1930).
- [5] M. S. Livingston, H. A. Bethe, Nuclear dynamics, experimental, *Rev. Mod. Phys.* **9**, 245 (1937).
- [6] F. Bloch, Zur Bremsung rasch bewegter Teilchen beim Durchgang durch Materie, *Ann. Physik*, **16**, 285 (1933).
- [7] C. F. Williamson, J. P. Boujot und J. Picard, Tables of Range and Stopping Power of Chemical Elements for Charged Particles of Energy 0.5 to 500 MeV, Rapport CEA-R 3042 (1966).
- [8] R. M. Sternheimer, Density effect for the ionisation loss in various materials, *Phys. Rev.* **145**, 247 (1966).
- [9] H. Piel, S. M. Qaim, G. Stöcklin, 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, *Radiochimica Acta*, **57**, 1 (1992).
- [10] P. Kopecky, F. Szelecsényi, T. Molnar, P. Mikecz, F. Tárkányi, Excitation functions of (p,xn) reactions on ^{nat}Ti : monitoring of bombarding proton beams, *Appl. Radiat. Isot.* **44**, 687 (1993).
- [11] A. Grütter, Excitation functions for radioactive isotopes produced by proton bombardment of Cu and Al in the energy range of 16 to 70 MeV, *Nucl. Phys. A* **383**, 98 (1982).
- [12] P. Kopecky, Proton beam monitoring via the $\text{Cu}(p,x) \text{}^{58}\text{Co}$, $^{63}\text{Cu}(p,2n) \text{}^{62}\text{Zn}$ and $^{65}\text{Cu}(p,n) \text{}^{65}\text{Zn}$ reactions in copper, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **36**, 657 (1985).
- [13] V. N. Aleksandrov, M. P. Semenova, V. G. Semenov, Production cross section of radionuclides in (p,xn) reactions at copper and nickel nuclei, *Sov. At. Energ.* **62**, 478 (1987).

- [14] M. Hille, P. Hille, M. Uhl, W. Weisz, Excitation functions of (p,n) and (α ,n) reactions on Ni, Cu and Zn, *Nucl. Phys. A* **198**, 625 (1972).
- [15] R. Collé, R. Kishore, J. B. Cumming, Excitation functions for (p,n) reactions to 25 MeV on ^{63}Cu , ^{65}Cu and ^{107}Ag , *Phys. Rev. C* **9**, 1819 (1974).
- [16] S. J. Mills, G. F. Steyn, F. M. Nortier, Experimental and theoretical excitation functions of radionuclides produced in proton bombardment of copper up to 200 MeV, *Appl. Radiat. Isot.* **43**, 1019 (1992)
- [17] M. C. Lagunas-Solar, O. F. Carvacho, R. R. Cima, Cyclotron production for PET radionuclides: ^{18}F (109.77 min; β^+ 96.9 %; EC 3.1 %) from high-energy protons on metallic aluminium targets, *Appl. Radiat. Isot.* **39**, 41 (1988).
- [18] G. F. Steyn, S. J. Mills, F. M. Nortier, B. R. S. Simpson, B. R. Meyer, Production of ^{52}Fe via proton-induced reactions of manganese and nickel, *Appl. Radiat. Isot.* **41**, 315 (1990).
- [19] S. Takács, M. Sonck, B. Scholten, A. Hermanne, F. Tárkányi, Excitation functions of deuteron induced nuclear reactions on $^{\text{nat}}\text{Ti}$ up to 20 MeV for monitoring deuteron beams, *Appl. Radiat. Isot.* **48**, 657 (1997).
- [20] W. Hauser, H. Feshbach, The inelastic scattering of neutrons, *Phys. Rev.* **87**, 366 (1952).
- [21] S. M. Qaim, H. V. Klapdor, H. Reiss, Statistical model analysis of cross sections of (n,t) and (n, ^3He) reactions induced by 14.6 MeV neutrons on target nuclei with $A = 27$ to 59, *Phys. Rev. C* **22**, 1371 (1980).
- [22] P. G. Young, E. D. Arthur, GNASH: Pre-equilibrium statistical nuclear model code for calculations of cross sections and emission spectra, Report No. LA-6947, Los Alamos Scientific Laboratory (1977).
- [23] M. Herman, A. Marcinkowski, K. Stankiewicz, Statistical multi step compound emission in (n,2n) reactions, *Nucl. Phys. A* **430**, 69 (1984).
- [24] M. Uhl, B. Strohmaier, STAPRE - A computer code for particle induced reaction activation cross section and related quantities, Institut für Radiumforschung und Kernphysik der Österreichischen Akademie der Wissenschaften, Vienna, Report No. IRK 76/01 (1976).
- [25] M. Blann, H. K. Vonach, Global test of modified precompound decay models, *Phys. Rev. C* **28**, 1475 (1983).

- [26] I. Dityuk, A. Yu. Konobeyev, V. P. Lunev, Yu. N. Shubin, New version of the advanced computer code ALICE-IPPE, Report INDC (CCP)-410, IAEA, Vienna (1998).
- [27] S. M. Qaim, Nuclear data relevant to cyclotron produced short-lived medical radioisotopes, *Radiochimica Acta*, **30**, 147 (1982).
- [28] S. M. Qaim, Medical radioisotopes and nuclear data, Proc. IAEA-Consultants', Meeting on Data Requirements for Medical Radioisotope Production, Tokyo, Japan, April 1987 (K. Okamoto, Editor), Report INDC(NDS)-195, Vienna, 1988, 25-32.
- [29] S. M. Qaim, Recent developments in the study of isomeric cross sections, Proc. Int. Conf. Nuclear Data for Science and Technology, Gatlinburg, Tennessee, USA, May 1994 (J. K. Dickens, Editor), American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois, 1994, 186-192.
- [30] H. Schicha and O. Schober, Nuklearmedizin, 3. Auflage, Schattauer, Stuttgart (1997).
- [31] H. H. Coenen, Radiopharmazeutische Chemie: Grundlagen zur in vivo Untersuchungen molekularer Vorgänge mit PET, *Der Nuklearmediziner*, **17**, 203 (1994).
- [32] J. Kupferschläger, K. Bilger, W. Müller-Schauenburg, R. Bares, Theorie und Praxis der Abschwächungskorrektur, *Der Nuklearmediziner* **22**, 97 (1999).
- [33] T. J. Spinks, R. Guzzardi, C. R. Bellina, Performance characteristics of a whole-body positron tomograph, *J. Nucl. Med.* **29**, 1833 (1988).
- [34] E. Rota Kops, H. Herzog, A. Schmid, S. Holte, L. E. Feinendegen, Performance Characteristics of an Eight-Ring Whole Body PET Scanner, *J. Comput. Assist. Tomogr.* **14**, 437 (1990).
- [35] S. R. Cherry, Recent advances in instrumentation for positron emission tomography, *Nucl. Instr. and Meth.* **A 348**, 577 (1994).
- [36] Z. Shuping, P. Bruyndonckx, M. B. Goldberg, S. Tavernier, Study of a high resolution 3D PET scanner, *Nucl. Instr. and Meth.* **A 348**, 607 (1994).
- [37] G. Stöcklin, PET in der Neuropharmakologie, Labor 2000, 3 (1991).
- [38] K. Wienhard, R. Wagner, W.-D. Heiss, PET-Grundlagen und Anwendungen der Positronen-Emissions-Tomographie, Springer, Berlin, Heidelberg (1989).

- [39] A. P. Wolf, W. B. Jones, Cyclotrons for biomedical radioisotope production, *Radiochim. Acta*, **34**, 1 (1983).
- [40] M. Sajjad, R. M. Lambrecht, Cyclotron production of medical radionuclides, *Nucl. Instr. and Meth. B* **79**, 911 (1993).
- [41] S. M. Qaim, J. C. Clark, C. Crouzel, M. Guillaume, H. J. Helmeke, B. Nebeling, V. W. Pike, G. Stöcklin, PET Radionuclide Production, in *Radiopharmaceuticals for Positron Emission Tomography* (G. Stöcklin and V. W. Pike, Editors), Kluwer, Dordrecht, The Netherlands, S. 1 - 43 (1993).
- [42] R. B. Firestone, Table of Isotopes, 8th Edition (V. S. Shirley, C. M. Baglin, S. Y. F. Chu and J. Zipkin, Editors), Wiley, New York (1996).
- [43] R. S. Yalow, S. A. Berson, Immunoassay of endogenous plasma insulin in man, *J. Clin. Invest.* **39**, 1157 (1960).
- [44] P. Aargaard, G. Andersson, J. O. Burgmann, A. C. Pappas, Measurements on electromagnetically separated radioactive isotopes of iodine, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **5**, 105 (1957).
- [45] G. Andersson, G. Rudstam, G. Sörensen, Decay data on some Xe, I and Te isotopes, *Arkiv Fysik* **28**, 37 (1965).
- [46] F. D. S. Butement, S. M. Qaim, Radioisotopes of iodine and xenon of masses 120 and 121, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **27**, 907 (1965).
- [47] J. M. Lagrange, G. Albouy, L. Marcus, M. Pautrat, H. Sergolle, O. Rahmouni, Du schéma de niveaux des isotopes pairs-pairs du tellure de nombre de masse: 126, 124, 122, 118, *Ann. Phys.* **2**, 141 (1967).
- [48] G. G. Jonsson, B. Forkman, (γ ,xn) reactions in ^{127}I , *Nucl. Phys. A* **107**, 52 (1968).
- [49] I. Ladenbauer-Bellis, H. Bakhru, Decay studies of iodine-118 and -120, *Phys. Rev.* **175**, 1507 (1968).
- [50] E. H. Spejewski, P. K. Hopke, F. W. Loeser Jr, Level structure of $^{115,118,120,122}\text{Te}$, *Phys. Rev.* **186**, 1270 (1969).
- [51] S. Gabrakov, Z. Zhelev, N. G. Zaitseva, I. Penev, S. S. Sabirov, The radiation from ^{120}I , $^{120\text{m}}\text{I}$, ^{122}I and ^{126}I , and the nature of the levels in even-even tellurium isotopes ($A=120, 122, 124, 126$), *Bull. Acad. Sci. USSR, Phys. Ser.* **34**, 1825 (1971).

- [52] H. M. A. Karim, A study of 4 GeV electron spallation products of iodine, *Radiochim. Acta* **19**, 1 (1973).
- [53] P. Hornshøj, B. R. Erdal, P. G. Hansen, B. Johnson, K. Aleklett, G. Nyman, Beta-strength functions of neutron-deficient isotopes in the xenon and mercury regions, *Nucl. Phys. A* **239**, 15 (1975).
- [54] Y. Ohkubo, N.T. Porile, C.J. Orth, L.C. Liu, Excitation functions of the $^{127}\text{I}(\pi, \pi xn)$ reactions in the region of the (3,3) resonance, *Phys. Rev. C* **27**, 1146 (1983).
- [55] K. Sakamoto, H. Toramoto, Y. Hamajima, K. Okada, M. Dohniwa, Photospallation reactions of ^{133}Cs and ^{139}La by 100 MeV and 200 MeV Bremsstrahlung, *Radiochim. Acta* **37**, 69 (1984).
- [56] Y. W. Yu, C. H. Lee, K. J. Moody, H. Kudo, D. Lee, G. T. Seaborg, Yield and recoil properties of iodine isotopes from the interaction of 240 MeV ^{12}C with ^{238}U , *Phys. Rev. C* **36**, 2396 (1987).
- [57] J. Zweit, S. K. Luthra, F. Brady, P. Carnochan, R. J. Ott, T. Jones, Iodine-120, A new positron emitting radionuclide for PET radiopharmaceuticals, Proceedings of 6th International Workshop on Targetry and Target Chemistry, Vancouver, B.C., Canada, 17-19 August 1995, p. 823.
- [58] A. Hohn, B. Scholten, H.H. Coenen, S.M. Qaim, Excitation functions of (p,xn) reactions on highly enriched ^{122}Te : relevance to the production of ^{120}gI , *Appl. Radiat. Isot.* **49**, 93 (1998).
- [59] J. J. Livingood, G. T. Seaborg, Radioactive isotopes of iodine, *Phys. Rev.* **54**, 775 (1938).
- [60] R. Van den Bosch, J. J. M. De Goeij, J. A. Van der Heide, J. F. W. Tertoolen, H. M. J. Theelen, C. Zegers, A new approach to target chemistry for the iodine-123 production via the $^{124}\text{Te}(p, 2n)$ reaction, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **28**, 255 (1977).
- [61] K. Kondo, R. M. Lambrecht, A. P. Wolf, Iodine-123 production for radiopharmaceuticals, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **28**, 395 (1977).
- [62] R. C. Barrall, J. E. Beaver, H. B. Hupf, F. F. Rubio, Production of curie quantities of high purity I-123 with 15 MeV protons, *Eur. J. Nucl. Med.* **6**, 415 (1981).

- [63] D. W. Palmer, S. A. Rao, Quantitation of iodine-124 contamination in iodine-123 radiopharmaceuticals: characterization of a second dose calibrator, *J. Nucl. Med.* **29**, 1302 (1988).
- [64] S. M. Larson, K. S. Pentlow, N. D. Volkow, A. P. Wolf, R. D. Finn, R. M. Lambrecht, M. C. Graham, G. Di Resta, B. Bendriem, F. Daghighian, PET scanning of iodine-124-3F9 as an approach to tumor dosimetry during treatment planning for radioimmunotherapy in a child with neuroblastoma, *J. Nucl. Med.* **33**, 2020 (1992).
- [65] M. A. Bakir, S. Eccles, J. W. Babich, N. Aftab, J. Styles, C. J. Dean, R. M. Lambrecht, R. J. Ott, S. A. Eccles, J. M. Styles, c-erbB2 protein overexpression in breast cancer as a target for PET using iodine-124-labelled monoclonal antibodies, *J. Nucl. Med.* **33**, 2154 (1992).
- [66] F. Daghighian, K. S. Pentlow, S. M. Larson, M. C. Graham, G. R. Di Resta, S. D. Yeh, H. Macapinlac, R. D. Finn, E. Arbit, N. K. Cheung, Development of a method to measure kinetics of radiolabelled monoclonal antibody in human tumour with applications to microdosimetry: positron emission tomography studies of iodine-124 labelled 3F8 monoclonal antibody in glioma, *Eur. J. Nucl. Med.* **20**, 402 (1993).
- [67] D. C. Crawford, M. A. Flower, B. E. Pratt, C. Hill, J. Zweit, V. R. McCready, C. L. Harmer, Thyroid volume measurement in thyrotoxic patients: comparison between ultrasonography and iodine-124 positron emission tomography, *Eur. J. Nucl. Med.* **24**, 1470 (1997).
- [68] R. M. Lambrecht, M. Sajjad, M. A. Qureshi, S. J. Al-Yanbawi, Production of iodine-124, *J. Radioanalyt. Nucl. Chem. Letters*, **127**, 143 (1988).
- [69] H. L. Sharma, J. Zweit, S. Downey, A. M. Smith, A. G. Smith, Production of ^{124}I for positron emission tomography, *J. Labelled Compd. Radiopharm*, **26**, 165 (1989).
- [70] R. G. Clem, R. M. Lambrecht, Enriched ^{124}Te targets for production of ^{123}I and ^{124}I , *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **303**, 115 (1991).

- [71] M. L. Firouzbakht, D. J. Schlyer, R. D. Finn, G. Laguzzi, A.P. Wolf, Iodine-124 production: excitation functions for the $^{124}\text{Te}(d,2n)^{124}\text{I}$ and $^{124}\text{Te}(d,3n)^{123}\text{I}$ reactions from 7 to 24 MeV, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **79**, 909 (1993).
- [72] R. Weinreich, E. J. Knust, Quality assurance of iodine-124 produced via the nuclear reaction $^{124}\text{Te}(d,2n)^{124}\text{I}$, *J. Radioanalyt. Nucl. Chem. Lett.* **213**, 253 (1996).
- [73] E. J. Knust, K. Dutschka, R. Weinreich, Preparation of ^{124}I solutions after thermodistillation of irradiated $^{124}\text{TeO}_2$ targets, *Appl. Radiat. Isot.* **52**, 181 (2000).
- [74] B. Scholten, S. Takács, Z. Kovács, F. Tárkányi, S. M. Qaim, Excitation functions of deuteron induced reactions on ^{123}Te : relevance to the production of ^{123}I and ^{124}I at low and medium sized cyclotrons, *Appl. Radiat. Isot.* **48**, 267 (1997).
- [75] E. Acerbi, C. Birattari, M. Castiglioni, F. Resmini, M. Villa, Production of ^{123}I for medical purposes at the Milan AVF cyclotron, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **26**, 741 (1975).
- [76] S. M. Qaim, G. Blessing, F. Tárkányi, N. Lavi, W. Bräutigam, B. Scholten, G. Stöcklin, Production of longer-lived positron emitters ^{73}Se , $^{82\text{m}}\text{Rb}$ and ^{124}I , Proceedings of the 14th International Conference on cyclotrons and their Applications, Cape Town, South Africa, p. 541 (1995).
- [77] B. Scholten, Z. Kovács, F. Tárkányi, S. M. Qaim, Excitation functions of $^{124}\text{Te}(p,xn)^{124,123}\text{I}$ reactions from 6 to 31 MeV with special reference to the production of ^{124}I at a small cyclotron, *Appl. Radiat. Isot.* **46**, 255 (1995).
- [78] S. M. Qaim, A. Hohn, G. Blessing, B. Scholten, H. H. Coenen, F. M. Nortier, I. W. Schroeder, T. N. van der Walt, Production of ^{124}I at small and medium sized cyclotrons, Proc. VIII Int. Workshop on Targetry and Target Chemistry, St. Lois, USA (1999).
- [79] S. M. Eschmann, I. Zagar, M. H. Thelen, G. Reischl, R. Lietzenmayer, B. M. Dohmen, K. Bilger, H.-J. Machulla, R. Bares, Untersuchungen zur Dosimetrie der Radioiodtherapie benigner Schilddrüsenerkrankungen mittels ^{124}I -PET, *Nuklearmedizin*, **38**, A 97 (1999).

- [80] Y. Sheh, J. Koziorowski, J. Balatoni, C. Lom, J. R. Dahl, R. D. Finn, Low energy cyclotron production and chemical separation of „no carrier added“ iodine-124 from a reusable, enriched tellurium-124 dioxide/Aluminiumoxide solid solution target, *Radiochim. Acta*, im Druck.
- [81] J. Zweit, M. A. Bakir, R. J. Ott, H. L. Sharma, M. Cox, R. Goodall, Excitation functions of proton induced reactions on natural tellurium: production of no-carrier added ^{124}I for PET applications, Proc. IV Int. Workshop on Targetry and Target Chemistry, Villigen, Switzerland, p. 76 (1991).
- [82] A. H. Wapstra, K. Bos, The 1977 atomic evaluation, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **19** (1977).
- [83] B. Scholten, S. M. Qaim, G. Stöcklin, Excitation functions of proton induced nuclear reactions on natural tellurium and enriched ^{123}Te : production of ^{123}I via the $^{123}\text{Te}(p,n)^{123}\text{I}$ -process at a low-energy cyclotron, *Appl. Radiat. Isot.* **40**, 127 (1989).
- [84] A. Mushtaq, S. M. Qaim, Excitation functions of α - and ^3He -particle induced nuclear reactions on natural germanium: Evaluation of production routes for ^{73}Se , *Radiochim. Acta*, **50**, 27 (1990).
- [85] G. Blessing, R. Weinreich, S. M. Qaim, G. Stöcklin, Production of ^{75}Br and ^{77}Br via the $^{75}\text{As}(^3\text{He},3n)^{75}\text{Br}$ and $^{75}\text{As}(\alpha,2n)^{77}\text{Br}$ reactions using Cu_3As -alloy as a high-current target material, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **33**, 333 (1982).
- [86] G. Blessing, W. Bräutigam, H. G. Böge, N. Gad, B. Scholten, S. M. Qaim, Internal irradiation system for excitation function measurement via the stacked-foil technique, *Appl. Radiat. Isot.* **46**, 955 (1995).
- [87] Z. Kormány, A new method and apparatus for measuring the mean energy of cyclotron beams, *Nucl. Instr. and Meth. A* **337**, 258 (1994).
- [88] S. M. Seltzer and M. J. Berger, Improved procedure for calculating the collision stopping power of elements and compounds for electrons and positrons, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **35**, 665 (1984).
- [89] K. Kondo, R. M. Lambrecht, E. F. Norton, A. P. Wolf, Cyclotron isotopes and radiopharmaceuticals XXII. Improved targetry and radiochemistry for production of ^{123}I and ^{124}I , *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **28**, 765 (1977).

- [90] R. M. Lambrecht, M. Sajjad, M. A. Qureshi, S. J. Al-Yanbawi, Production of Iodine-124, *J. Radioanalyt. Nucl. Chem. Lett.* **127**, 143 (1988).
- [91] M. L. Firouzbakht, D. J. Schlyer, A. P. Wolf, The yield of I-124 from different target materials in the $^{124}\text{Te}(\text{d},2\text{n})^{124}\text{I}$ reaction and an improved recovery method for Te-124, *J. Lab. Comp. Radiopharm.* **35**, 257 (1994)
- [92] G. Toth, L. Repas, G. Fabian, Dry distillation separation of carrier-free I-131 from reactor irradiated Mg_3TeO_6 , *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **26**, 781 (1975).
- [93] R. Van den Bosch, J. J. M. De Goeij, J. A. Van der Heide, J. F. W. Tertoolen, H.M.J. Theelen, C. Zegers, A new approach to target chemistry for the iodine-123 production via the $^{124}\text{Te}(\text{p},2\text{n})$ reaction, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **28**, 255 (1977).
- [94] H. Michael, H. Rosezin, H. Apelt, G. Blessing, J. Knieper, S. M. Qaim, Some technical improvements in the production of ^{123}I via the $^{124}\text{Te}(\text{p},2\text{n})^{123}\text{I}$ reaction at a compact cyclotron, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **32**, 581 (1981).
- [95] G. J. Beyer, C. Damm, H. Odrich, G. Pimentel, Production of ^{123}I at the Rossendorf U-120 cyclotron, *Radiochem. Radioanalyt. Lett.* **47**, 151 (1981).
- [96] J. Zweit, M. Flower, A. Brown, P. Carnochan, S. Luthra, F. Brady, V. Pike, G. Vaidyanathan, M. Zalutsky, R. J. Ott, T. Jones, Iodine-120-mIBG: production and nca labelling of a new PET radiotracer, *J. Nucl. Med.* **37**, 874 (1996).
- [97] E. Mennicke, M. Holschbach, H. H. Coenen, N.c.a. radioiodination of deactivated arenes with n-chlorosuccinimide in trifluoromethanesulfonic acid, *J. Labelled Cpd. Radiopharm.* **42**, S 801 (1999).
- [98] K.-J. Langen, H. H. Coenen, N. Roosen, P. Kling, O. Muzik, H. Herzog, T. Kuwert, G. Stöcklin, L. E. Feinendegen, SPECT studies of brain tumors with L-3-[^{123}I]iodo- α -methyltyrosine: comparison with PET, ^{124}I MT and first clinical results, *J. Nucl. Med.* **31**, 281 (1990).
- [99] C. Krummeich, M. Holschbach, G. Stöcklin, Direct n.c.a. electrophilic radioiodination of tyrosine analogues; their in vivo stability and brain-uptake in mice, *Appl. Radiat. Isot.* **45**, 929 (1994).
- [100] B. Guth-Tougelidis, S. Müller, M. M. Mehdorn, E. J. Knust, K. Dutschka, C. Reiners, Anreicherung von D,L-3- ^{123}I -Iod- α -Methyltyrosin in Hirntumorzidiven, *NuklearMedizin*, **34**, 71 (1995).

- [101] K. Kawai, Y. Fujibayashi, Y. Yonekura, J. Konishi, A. Kubodera, Y. Yokoyama, A strategy for the study of cerebral amino acid transport using iodine-123 labelled amino acid radiopharmaceutical: 3-Iodo- α -methyl-L-tyrosine, *J. Nucl. Med.* **32**, 819 (1991).
- [102] M. Blann, Preequilibrium decay, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **25**, 123 (1975).
- [103] M. Blann, New precompound decay model, *Phys. Rev.* **C 54**, 1341 (1996).
- [104] T. Udagawa, T. Tamura, Formulation of elastic and inelastic breakup-fusion reactions, *Phys. Rev.* **C 33**, 494 (1986).
- [105] A. V. Ignatyuk, K. K. Istekov, G. N. Smirenkin, The role of collective effects in the systematics of nuclear level densities, *Sov. J. Nucl. Phys.* **29**, 450 (1979).
- [106] A. I. Blokhin, A. V. Ignatyuk, Yu. N. Shubin, Vibrational enhancement of the level density of nuclei in the iron region, *Sov. J. Nucl. Phys.* **48**, 232 (1988).
- [107] A. V. Ignatyuk, J. L. Weil, S. Raman, S. Kahane, Density of discrete levels in ^{116}Sn , *Phys. Rev.* **C 47**, 1504 (1993)
- [108] W. Hauser, H. Feshbach, The inelastic scattering of neutrons, *Phys. Rev.* **87**, 366 (1952).
- [109] P. A. Moldauer, Statistics and the average cross section, *Nucl. Phys.* **A 344**, 185 (1980).
- [110] J. J. Griffin, Statistical model of intermediate structure, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 478 (1966).
- [111] C. K. Cline, M. Blann, The pre-equilibrium statistical model: Description of the nuclear equilibration process and parametrization of the model, *Nucl. Phys.* **A 172**, 225 (1971).
- [112] G. M. Braga-Marcazzan, E. Gadioli-Erba, L. Millazzo-Coli, P. G. Sona, Analysis of the total (n,p) cross sections around 14 MeV with the pre-equilibrium exciton model, *Phys. Rev.* **C 6**, 1398 (1972).
- [113] C. Kalbach-Cline, Residual two-body matrix elements for pre-equilibrium calculations, *Nucl. Phys.* **A 210**, 590 (1973).
- [114] G. Audi, A. H. Wapstra, The 1995 update to the atomic mass evaluation, *Nucl. Phys.* **A 595**, 409 (1995).
- [115] W. Dilg, W. Schantl, H. Vonach, Level density parameter for the back shifted Fermi gas model in the mass range $40 < A < 250$, *Nucl. Phys.* **A 217**, 269 (1973).

- [116] H. Kaur, J. Singh, A. Sharma, J. Goswamy, D. Mehta, N. Singh, R. K. Bhowmik, P. N. Trehan, Band structures in doubly-odd ^{120}I nucleus, *Z. Phys. A* **352**, 11 (1995).
- [117] D. C. Kocher, *Nucl. Data Sheets* **17**, 39 (1976).
- [118] S. Sudár, A. Hohn, S. M. Qaim, Nuclear model calculations on proton and deuteron induced reactions on ^{122}Te and ^{120}Te with particular reference to the formation of the isomeric states $^{120\text{m,g}}\text{I}$, *Appl. Radiat. Isot.* **52**, 937 (2000).
- [119] S. M. Qaim, A. Mushtaq and M. Uhl, Isomeric cross-section ratio for the formation of $^{73\text{m,g}}\text{Se}$ in various nuclear processes, *Phys. Rev. C* **38**, 645 (1988).
- [120] S. M. Qaim, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Gatlinburg, TN (J.K. Dickens, Editor) p. 186. American Nuclear Society, La grange Park, IL (1994).
- [121] S. Sudár and S. M. Qaim, Isomeric cross-section ratio for the formation of $^{58}\text{Co}^{\text{m,g}}$ in neutron, proton, deuteron and alpha-particle induced reactions in the energy region up to 25 MeV, *Phys. Rev. C* **53**, 2885 (1996).

Danksagung

Eine solche Arbeit ist nie das Werk eines einzelnen. Daher soll an dieser Stelle allen gedankt werden, die direkt oder indirekt an der Arbeit beteiligt waren.

Als erstes möchte ich Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. S. M. Qaim danken. Er war für mich stets mehr als nur ein Betreuer. Sein besonderes Interesse an dieser Arbeit und sein fachliches Wissen waren eine unschätzbare Hilfe für mich. Besonders hoch rechne ich ihm an, daß er jederzeit ein offenes Ohr für berufliche und auch private Angelegenheiten hatte.

Mein weiterer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. H. Coenen für die Bereitstellung der Arbeitsmittel und sein beständiges Interesse an dieser Arbeit.

Danken möchte ich besonders auch Herrn. Dipl. Ing. G. Blessing. Sein Ideenreichtum und seine ständige Hilfsbereitschaft waren sehr wertvoll. Die Diskussionen mit ihm werde ich in Zukunft sehr vermissen.

Mein spezieller Dank gilt Dipl. Chem. E. Heß und Dipl. Chem. C. Hocke. Ihr Anteil am Gelingen dieser Arbeit war größer, als sie selber vermuten werden.

Herrn Dr. M. Nortier danke ich für die sehr freundliche Betreuung in Südafrika. Es war mir ein Vergnügen mit ihm gemeinsam arbeiten zu können.

Dankbar bin ich auch Herrn Dr. H. Herzog für die Phantommessungen.

Den Herren Dr. Yu. N. Shubin aus Obninsk, Rußland und Dr. S. Sudár, Debrecen, Ungarn möchte ich für die Einführung in die Kernmodellrechnungen ALICE-IPPE und STAPRE und für die Durchführung der Kernmodellrechnungen danken.

Für die Zusammenarbeit bei den Markierungsexperimenten danke ich Herrn Dipl. Chem. E. Mennicke.

Herrn Dr. B. Scholten und S. Spellerberg danke ich für die Unterstützung bei den experimentellen Arbeiten.

Die Unterstützung aus den Werkstätten lernt man meistens erst dann zu schätzen, wenn sie einem nicht mehr zur Verfügung steht. Daher soll hier stellvertretend den Herren L. Rütten aus „unserer“ Institutswerkstatt und G. D’Orsaneo aus der Glaswerkstatt gedankt werden. Ihre Hilfe beschränkte sich nicht auf die Ausführung von Aufträgen.

Danken möchte ich auch den Operateuren aller Zyklotrone, an denen ich arbeiten durfte. Speziell Herrn J. Hengesbach danke ich dafür, daß er oft das letzte aus seiner Maschine herauskitzelte.

Zuletzt gilt mein Dank allen ungenannten Mitarbeitern des Instituts für das wirklich angenehme Arbeitsklima. Ein gutes Arbeitsklima ist ein nicht zu unterschätzender Faktor für das Gelingen einer Arbeit.

Forschungszentrum Jülich



Jül-3838
Dezember 2000
ISSN 0944-2952