



Institut für Nuklearchemie

***Aktivierungsquerschnitte von (p,x)-Prozessen
an biologisch relevanten Elementen im
Energiebereich von 50 bis 350 MeV für
medizinisch-therapeutische Anwendungen***

Michael Faßbender

***Aktivierungsquerschnitte von (p,x)-Prozessen
an biologisch relevanten Elementen im
Energiebereich von 50 bis 350 MeV für
medizinisch-therapeutische Anwendungen***

Michael Faßbender

Abstract

For developing a cross section data base for estimating the activation of human tissue and beam collimator material during proton therapy, several (p,x) processes were investigated in the energy range of 50 to 360 MeV using the stacked-foil activation method, radiochemical separations and high resolution γ -ray spectrometry. Irradiations were done with medium-energy protons from the cyclotrons TSL Uppsala (Sweden) and LNS Saturne (France). The subsequent radiochemical work was done at Jülich.

A cation exchange-HPLC method was developed to obtain the low-yield products ^7Be and ^{22}Na in a radiochemically pure form. Cross sections of (p, ^7Be) reactions could be measured for the first time on the elements P, S, Cl, Ca, Zn and brass alloy. Over the investigated energy range of 80 to 360 MeV the cross section amounts to 0.1- 2.0 mb. New information was also obtained on (p, ^7Be) reactions on C, N, O, F, Na, Al, Si, Fe and Cu in various energy regions. Cross sections for the formation of the sodium radioisotopes ^{22}Na and ^{24}Na were obtained for the elements Si, P, S, Cl, Na, Ca and Cu for proton energies from 100 up to 260 MeV. In most of the cases very little information was available in the literature, so that gaps could be filled.

The formation of the short-lived β^+ emitters ^{11}C ($T_{1/2}=20.0$ min) and ^{15}O ($T_{1/2}=2.0$ min) in the interaction of protons with C,N and O was investigated over the energy range of 50 to 70 MeV and at 180 MeV. More detailed studies were performed on the formation of activation products in irradiations of Ca, Cu, Zn and brass with 80-360 MeV protons. Cross sections for the formation of $^{55,56,57,58}\text{Co}$, $^{52g,54}\text{Mn}$, ^{51}Cr , ^{48}V , $^{44m,48}\text{Sc}$, ^{47}Ca and $^{43,42}\text{K}$ were determined experimentally. For an interpretation of the data nuclear model calculations using the code ALICE-IPPE 96 were performed. The experimental data agree with the results of model calculations, especially for product nuclides in the vicinity of the target nuclide, and for energies < 120 MeV. Considerable deviations were observed for higher energies and for product nuclides far from the β -stability line.

Activation and dose estimates were performed for the formation of ^{11}C , ^{15}O and ^7Be in muscle and ^{22}Na and ^{44m}Sc in bone tissue. Activation estimates were also done for the production of ^{62}Zn , ^{67}Ga and ^{54}Mn in the beam collimator material: While ^{62}Zn decays completely between two therapy runs, the ^{67}Ga residual activity oscillates between 4 and 20 MBq (for a 200 MeV p-beam of 400 nA). Due to its long half-life, ^{54}Mn is accumulated to activity levels of about 55 MBq (~ 2 mCi) yearly. The total radionuclide dose generated in the treated tissue volume amounts to about 25% of the irradiation dose (assumed as 2 Sv p-radiation dose/ application).

0. **Inhaltsverzeichnis**

1. **Einleitung** 1

1.1 **Kernreaktionen** 1

1.1.1 Energetik 1

1.1.2 Reaktionswirkungsquerschnitt und Anregungsfunktion 1

1.1.3 Kernreaktionen bei niedrigen Energien (< 100 MeV) 2

1.1.4 Kernreaktionen bei intermediären Energien (100-400 MeV) 5

1.1.5 Komplexeilchenemission bei Kernreaktionen 6

1.1.6 Theoretische Berechnung von Kernreaktionswirkungsquerschnitten 8

1.2 **Techniken zur Kernreaktionsstudie** 9

1.3 **Radiochemische Trennungen** 11

1.3.1 Ionentrennungen durch Hochleistungs-Flüssigkeits-Chromatographie 11

1.4. **Bildung von Aktivierungsprodukten in der Materie** 14

1.4.1 Wechselwirkung von geladenen Teilchen mit Materie 14

1.4.2 Berechnung der gebildeten Radionuklidaktivität 14

1.5 **Protonenstrahlentherapie** 15

1.5.1 Allgemeines 15

1.5.2 Therapeutische Besonderheit des Protonenstrahls 16

1.5.3 Die Bedeutung nuklearer Daten 17

2. **Problemstellung** 20

3. **Experimentelles** 22

3.1 **Bestrahlungen** 22

3.1.1 Targetmaterialien 22

3.1.2 Bestrahlungsexperimente 25

-II-

3.1.3	Bestrahlungsparameter	26
3.1.4	Energiedegradation	28
3.2	γ-Spektrometrie	28
3.2.1	Spektrometriesystem	28
3.2.2	Energiekalibration und Ansprechwahrscheinlichkeit	29
3.3	Röntgenspektrometrie	32
3.3.1	Einleitung und Spektrometriesystem	32
3.3.2	Röntgenabsorption in dicken Targetfolien	35
3.4	Bestimmung des Protonenflusses	38
3.5	Bestimmung von Kernreaktionsdaten	42
3.5.1	Absolute Aktivität	42
3.5.2	Wirkungsquerschnitt	43
3.6	Chemische Trennungen	45
3.6.1	Trennproblem, Geräteaufbau und Eluentenwahl	45
3.6.2	Ermittlung der Säulenparameter	49
3.6.3	Ermittlung der chromatographischen Trennausbeute	53
3.6.4	^7Be -Abtrennung aus Eisen	54
3.6.5	^7Be -Abtrennung aus Kupfer und den Kupferverbindungen CuCl , Cu_3P , Cu_2S	59
3.6.6	Abtrennung von Na-Aktivitäten aus Nebengruppenmetallen und -verbindungen ...	62
3.6.7	Fehlerdiskussion	64
4.	Kernmodellrechnungen	66
4.1	Precompound-Hybrid-Modell	66
4.2	Der Code ALICE-IPPE	68
4.2.1	Algorithmus	68
4.2.2	Parameterwahl	69
4.2.3	Qualität der Rechenergebnisse und Programmoptimierung	70

5. Experimentelle Ergebnisse und Vergleich mit der Theorie . 73

5.1	Wirkungsquerschnitte für (p, ⁷Be)-Prozesse	73
5.1.1	Kohlenstoff	73
5.1.2	Stickstoff	74
5.1.3	Sauerstoff	76
5.1.4	Fluor	78
5.1.5	Natrium	79
5.1.6	Aluminium	81
5.1.7	Silicium	81
5.1.8	Phosphor	83
5.1.9	Schwefel	85
5.1.10	Chlor	85
5.1.11	Calcium	86
5.1.12	Eisen	88
5.1.13	Kupfer	89
5.1.14	Zink	91
5.1.15	Messing	91
5.2	Wirkungsquerschnitte für die Bildung von ²²Na und ²⁴Na	94
5.2.1	Natrium	96
5.2.2	Aluminium	96
5.2.3	Silicium	97
5.2.4	Phosphor, Schwefel und Chlor	100
5.2.5	Calcium	106
5.2.6	Eisen und Kupfer	106
5.3	Aktivierungsprodukte aus Mittelschweren Elementen	108
5.3.1	Eisen	108
5.3.2	Kupfer	112
5.3.3	Zink	119
5.3.4	Messing	122
5.3.5	Calcium	126
5.4	Kurzlebige Positronenstrahler aus Stickstoff und Sauerstoff	129

6.	Systematische Betrachtungen der Kerndaten	133
6.1	(p, ^7Be)-Prozesse	133
6.1.1	Einfluß von Kernladung und -masse	133
6.1.2	Einfluß der Bindungsenergieparameter	138
6.2	(p,x) ^{22}Na, ^{24}Na -Prozesse	140
6.3	Integrale und integrierte Kernreaktionsquerschnitte für Messing	141
7.	Aktivierungs- und Dosisabschätzung	141
7.1	Aktivierung des menschlichen Gewebes	142
7.1.1	Energiedegradation	142
7.1.2	Bildung von ^{15}O	144
7.1.3	Bildung von ^{13}N	145
7.1.4	Bildung von ^{11}C	145
7.1.5	Bildung von ^7Be und ^{22}Na	146
7.1.6	Bildung von $^{44\text{m}}\text{Sc}$	149
7.1.7	β -Dosisabschätzung bei Gewebeaktivierung	149
7.2	Aktivierung des Kollimatorenmaterials	151
8.	Zusammenfassung	154
9.	Literatur	157
10.	Danksagungen	167

1. Einleitung

1.1 Kernreaktionen

1.1.1 Energetik

Die Energiebilanz einer Kernreaktion wird durch den Q-Wert beschrieben; er ergibt sich direkt aus der Differenz der kinetischen Energien bzw. nach der speziellen Relativitätstheorie aus der Differenz der relativen Atommassen der beteiligten Kerne [LIE 80]. Ist der Q-Wert kleiner als null, muß die zur Kernreaktion notwendige Energie durch die Bewegungsenergie des Geschossteilchens aufgebracht werden. Nun wird bei der Emission des Produktteilchens ein Impulsanteil auf den Produktkern übertragen, so daß nur eine verminderte Anregungsenergie für die Kernreaktion verfügbar ist. Als *Schwellwertenergie* bezeichnet man die Energie, die für die Auslösung einer Kernreaktion mindestens aufgebracht werden muß. Dringen geladene Teilchen in den Kern ein oder treten sie aus ihm aus, so müssen elektrostatische Kräfte überwunden werden. Die Höhe dieses Coulombwalles, d.h. der Betrag des elektrostatischen Potentials, kann näherungsweise klassisch berechnet werden. Der Betrag der Teilchen-Wellenfunktion des übergehenden Teilchens ist jedoch jenseits des Coulombwalles von null verschieden (*Tunneleffekt*), so daß auch für kleinere Teilchenenergien eine gewisse Reaktionswahrscheinlichkeit besteht.

1.1.2 Reaktionswirkungsquerschnitt und Anregungsfunktion

Die Bildungsrate eines Nuklids bei Bestrahlung eines Targetmaterials mit der Teilchenzahl N und der Isotopenhäufigkeit H ist proportional zur Flußdichte Φ der Geschossteilchen:

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \sigma \cdot \Phi \cdot H \cdot N \quad (1.1)$$

Die Konstante σ heißt Wirkungsquerschnitt, sie hat die Dimension einer Fläche. Die übliche Einheit für den Wirkungsquerschnitt ist das barn (b).

$$1b = 10^{-24} \text{cm}^2 = 10^{-28} \text{m}^2 \quad (1.2)$$

Bildet sich ein instabiler Kern B, so müssen sowohl die Bildung aus dem Kern A, als auch der Zerfall von B berücksichtigt werden:

$$\frac{dN}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot H \cdot N_A - \lambda \cdot N_B \quad (1.3)$$

Die Lösung der Differentialgleichung führt zur sogenannten *Aktivierungsgleichung*:

$$N_B(t) = \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot H \cdot N_A}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.4)$$

Für die Aktivität des Nuklids B ergibt sich direkt

$$A = -\frac{dN_B}{dt} = \lambda \cdot N_B = \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot H \cdot N_A}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.5)$$

Sind alle übrigen Parameter aus (1.5) bekannt, so kann durch Messung der Aktivität bei Bestrahlungsende direkt der Wirkungsquerschnitt σ für die Kernreaktion ermittelt werden. Der Wirkungsquerschnitt einer bestimmten Kernreaktion ist sowohl von der Geschossteilchenenergie abhängig als auch eine Funktion des Teilchenemissionswinkels. Als **Anregungsfunktion** bezeichnet man die Auftragung des Wirkungsquerschnittes gegen die Energie des Geschossteilchens $\sigma(E)$.

1.1.3 Kernreaktionen bei niedrigen Energien (< 100 MeV)

Zur Beschreibung von Kernphänomenen werden verschiedene Kernmodelle herangezogen, da sich nicht alle experimentellen Befunde auf ein einheitliches Modell zurückführen lassen. Das sogenannte *Tröpfchenmodell* vergleicht den Kern mit einem Flüssigkeitsvolumen, der durch Oberflächenspannung zu einem Tropfen geformt wird. Im *Fermigasmodell* bewegen sich die Nukleonen frei, vergleichbar mit einem idealen Gas, in einer Potentialmulde, die durch eine Wandung von einem höherem Potential begrenzt ist, so daß sie im Grundzustand nicht entweichen können. Die Lösung der Schrödinger-Gleichung für ein solches 'Teilchenensemble im Kasten' ergibt ein einfaches Niveau-Schema mit nach oben hin zunehmender Niveaudichte und angrenzendem Kontinuum. Das *Schalenmodell* deutet das Auftreten der sog. 'Magischen Nukleonenzahlen' [MAY 94].

Die sogenannten **direkten Reaktionen** sind durch eine sehr kurze Wechselwirkungsdauer von 10^{-23} - 10^{-22} s gekennzeichnet; während der Reaktion erfolgt ein direkter Übergang aus dem Eingangs- in den Ausgangskanal, ohne daß infolge zahlreicher Nukleon-Nukleon-Stöße als

Zwischenphase ein gebundener Zustand des Gesamtsystems erreicht wird. Oppenheimer und Phillips (1935) zeigten, daß (d,p)-Reaktionen bei niedrigen Energien durch direkte, d.h. ohne Bildung und anschließenden Zerfalls eines Zwischenproduktes, Übertragung eines Neutrons auf den Targetkern stattfinden. Dies führt zu einer Protonen-Winkelverteilung, die, relativ zur Projektilbahn, durch kleine Streuwinkel im vorderen und hinteren Targetbereich ausgezeichnet ist [HOD 92].

Typische Beispiele für direkte Kernprozesse sind die *elastische Streuung*, die durch das einfache sog. **optische Modell** [vgl. MEH 88, Seite 23] beschrieben werden kann, die *inelastische Streuung*, bei der im Targetkern angeregte Zustände bevölkert werden, und die *charge-transfer-Reaktionen*, bei denen die emittierten Teilchen eine ähnliche Projektilmasse besitzen, so daß im Gesamtprozeß lediglich Ladung übertragen wird. Das einfachste Beispiel für eine *charge-transfer-Reaktion* ist die (p,n)-Reaktion. Andere Beispiele für Direkt-Prozesse sind die *stripping*- und die *pick-up*-Reaktionen, bei denen ein oder mehrere Nukleonen beteiligt sind. Typische *stripping*-Reaktionen sind, neben der oben angeführten (d,p)-Reaktion, (t,p)- und (α ,p)-Prozesse, während die inversen Vorgänge *pick-up*-Reaktionen darstellen.

Die sogenannten **Compound-Kern- (compound nucleus-, CN-)prozesse** verlaufen über die Bildung eines stabilen Komplex-Kern-Zwischenzustandes; Compoundkern-Resonanzen wurden erstmalig durch die Breit-Wigner-Theorie gedeutet. Ein weiterentwickeltes CN-Konzept wurde 1940 durch die Weisskopf-Ewing-Theorie [WEI 37, WEI 40] geliefert und später (1952) durch Hauser-Feshbach (Drehimpuls-Berücksichtigung) verbessert. Die Weisskopf-Ewing-CN-Theorie basiert auf der Annahme, daß die Projektilenergie zunächst gleichmäßig innerhalb von ca. 10^{-16} s auf den Compound-Kern verteilt wird, worauf es zu einer Verdampfung von Nukleonen mit maxwell-verteilten Energien der verdampften Teilchen kommt. Ein Compoundkern kann auf verschiedenen Wegen (Reaktionskanälen) abreagieren.

Als **intermediäre Prozesse** bezeichnet man die Zwischenstufen zwischen dem direkten Übergang vom Eingangs- in den Ausgangskanal einerseits und dem komplexeren Compoundkern-Übergang andererseits. Ihre Lebensdauer τ_i ist wesentlich kürzer als die der Compoundkernzustände, jedoch länger als die bei direkten Prozessen. Die Beschreibung solcher Prozesse geschieht mit Hilfe des sog. *Exciton-Modells* [GRI 66], wonach der Kern als Fermi-Gas mit Einteilchenzuständen betrachtet wird, die im Grundzustand bis zur *Fermi-Energie* (maximales Besetzungspotential) besetzt sind.

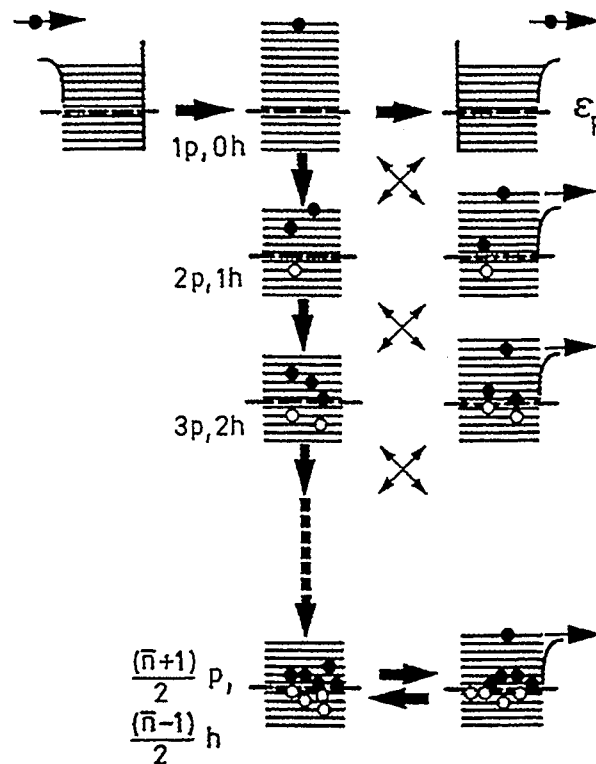


Abb. 1.1: Excitonenmodell: Bildung einer zunehmenden Anzahl von Teilchen-Loch-Paaren. In jeder Konfiguration besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit für eine Teilchenemission. ϵ_F ist die Fermi-Energie (aus [MUS 88])

Angeregte Kernzustände lassen sich dann eindeutig durch die Anzahl angeregter Teilchen p plus Löcher h (=Excitonen) sowie die Anregungsenergie E charakterisieren, wobei alle Zustände mit gleichem $n=p+h$ als gleichwahrscheinlich angesehen werden (Abb. 1.1). Das Projektilteilchen tritt mit dem Targetkern in Wechselwirkung, es entsteht zunächst eine kleine Anzahl Excitonen (Teilchen-Loch-Paare). Schwache Zwei-Teilchen-Restwechselwirkungen führen nun zu einer intranuklearen Kaskade, einer Umverteilung der Excitonen, zu Geburt oder Vernichtung von Teilchen-Loch-Paaren. Für die Excitonenanzahl n gilt die Auswahlregel $\Delta n = 0, \pm 2$. Eine anfänglich quasifreie Bewegung eines eingeschlossenen Nukleons entspricht einem $1p0h$ Zustand, der nach der ersten Restwechselwirkung (=Absorption) in einen $2p1h$ -Zustand übergeht. Aus diesem kann ein Teilchen in das Kontinuum entweichen (=Emission), oder es können weitere Excitonen entstehen. So entsteht eine Kette von Übergängen; aus jeder Zwischenstufe dieses Entwicklungsprozesses kann es mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit zur Teilchenemission kommen, bevor das System sich im Gleichgewicht befindet (**Präequilibrium-Emission, PE**) [vgl. BLA 72, BLA 75, BLA 83].

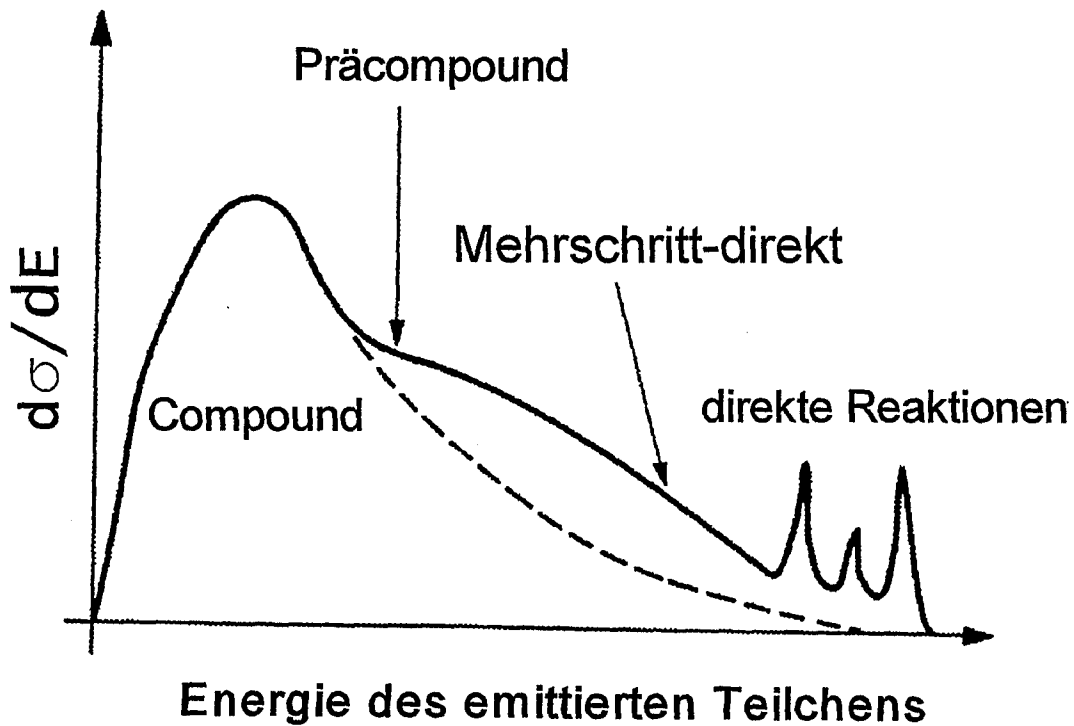


Abb. 1.2: Schematische Darstellung eines (p,p')-Nukleon-Emissionsspektrums

Abb. 1.2 zeigt ein typisches Energiespektrum bei einer mit 62 MeV-Protonen ausgelösten (p,p')-Reaktion. Während bei niedrigen Energien die Compoundkern-Prozesse überwiegen (Verdampfungspeak), wird der differentielle Wirkungsquerschnitt $d\sigma/dE$ bei Teilchenenergien zwischen 10 MeV und 50 MeV hauptsächlich durch ein Kontinuum, verursacht durch Vorgleichgewichts-(Präcompound-)prozesse, bestimmt. Bei Energien zwischen 50 MeV und 60 MeV dominieren die direkten Prozesse, was an den scharfen Resonanzen (Übergänge zu diskreten angeregten Niveaus) erkennbar ist.

1.1.4 Kernreaktionen bei intermediären Energien (100-400 MeV)

Bei Projektilenergien >100 MeV verhalten sich die Nukleonen im Kern gegenüber dem Projektil als quasifreie Teilchen. Da die de Broglie-Wellenlänge des Projektilteilchens für hohe Energien sehr klein ist gegenüber dem Nukleonabstand im Kern, kommt es zu elastischen und unelastischen Stößen zwischen dem Projektil und einzelnen Nukleonen, die somit, in Vorwärtsrichtung beschleunigt, eine *intramolekulare Kaskade* auslösen. Der Restkern befindet sich weiterhin im angeregten Potential und gibt die Anregungsenergie durch Verdampfung mehrerer Nukleonen und Teilchen bzw. durch Spaltung ab. Ein solcher Prozeß mit Hochenergie-

Geschoßteilchen wird als **Spallation** bezeichnet. Das "**Cascade-Evaporation-Modell**" beschreibt die Kaskaden mit Hilfe von Monte-Carlo-Simulationen und den Verdampfungsprozeß mit dem Weisskopf-Ewing-Modell. Bei einer Spallation können mit größerer Wahrscheinlichkeit neben einzelnen Nukleonen auch Nukleoncluster und Fragmente den Kern verlassen (**Fragmentation**).

Während Spallationsprozesse hauptsächlich bei Energien ≥ 200 MeV stattfinden, konkurrieren im intermediären Energiebereich 50-200 MeV Spallations- und Vergleichgewichtsprozesse miteinander. Zu Spallationsprozessen existieren bereits ausführliche experimentelle Daten und Systematiken; die Beschreibung durch das Kaskaden-Verdampfungsmodell ist zuverlässig. Anders verhält es sich im intermediären Bereich: Der Vorrat an experimentellen Daten ist mangelhaft; die theoretische Vorhersage durch Vergleichgewichts-Spallations-Hybrid-Modelle ist oft nur bis auf einen Faktor 2 möglich.

1.1.5 Komplexe Teilchenemission bei Kernreaktionen

Bei der Wechselwirkung von Neutronen und beschleunigten Ionen mit Kernen können außer einzelnen Nukleonen auch komplexe Teilchen wie ^2H , ^3H , ^3He , ^4He , ^6Li , ^7Be emittiert werden [QAI 95a]; dabei nimmt die Emissionswahrscheinlichkeit für komplexe Teilchen aufgrund der steigenden Coulomb-Barriere mit zunehmender Ladung des Targetkerns ab. Andererseits wird die Emission mehrfach geladener Teilchen umso wahrscheinlicher, je höher die Energie des Projektils ist. Studien zu Komplexe Teilchenemissionen sind sowohl für das Verständnis von Kernstrukturen als auch für praktische Anwendungen von Bedeutung; so sind Kernreaktionen mit Tritium- und Heliumemissionen wie (d, α) , $(^3\text{He}, t)$, $(^3\text{He}, \alpha)$ -Prozesse für die Population von Hochspin-Zuständen des Produktkerns bekannt.

Durch Untersuchungen von (n, d) , (n, t) und (n, α) -Prozessen mit $t(d, n)$ -14 MeV-Neutronen konnten zahlreiche Daten [QAI 76] zu *neutroneninduzierten* Komplexe Teilchenemissionen erhalten werden; unter anderem stellte sich heraus, daß die Emission komplexer Teilchen (außer α -Partikel) hauptsächlich durch direkte (pick-up-, knock-out- usw.) und weniger durch Gleichgewichtsprozesse bestimmt wird [QAI 80, QAI 82, QAI 86, WOL 90].

Leichtioneninduzierte Prozesse mit der Emission komplexer Teilchen sind bis zu Energien im GeV-Bereich mit verschiedenen on-line- und off-line-Methoden (siehe Kap. 1.2) untersucht worden.

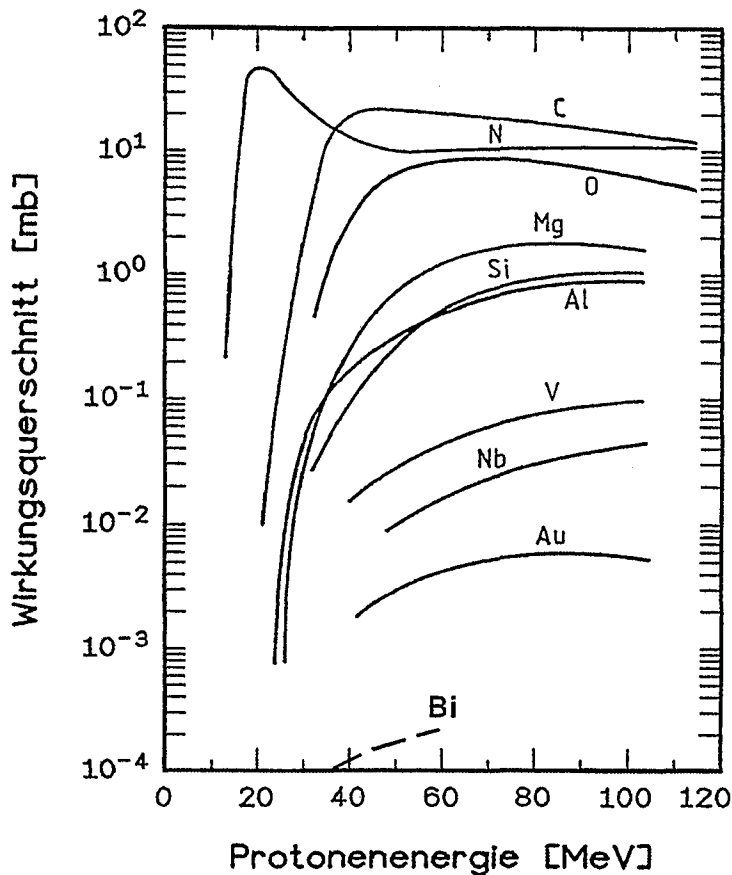


Abb 1.3: Anregungsfunktionen für die protoneninduzierte ^7Be -Emission für verschiedene Elemente [aus SCH 93]

Die besten mechanistischen Informationen für Kernreaktionen erhält man bei der rein physikalischen (on-line) Untersuchung der Winkel und Energieverteilung der emittierten Teilchen; dies ist z.B. im Falle der durch geladene Teilchen induzierten Reaktionen bei Projektilenergien ≥ 20 MeV möglich. Ergebnis qualitativer und quantitativer Untersuchungen einiger der zahlreichen möglichen Prozesse war, daß die Emission von Komplexeilchen, außer ^4He , in der Hauptsache durch direkte Prozesse bestimmt wird [BER 73]. Da die meisten dieser spektralen Messungen in Strahlvorwärtsrichtung, bei Streuwinkeln $\leq 70^\circ$, durchgeführt wurden, fehlen Informationen über den für Compoundkernprozesse charakteristischen hinteren Streubereich, so daß die Beiträge durch Compoundkernbildung schlecht abgeschätzt werden können.

β -Zählungen und γ -spektrometrische Messungen von Aktivierungsprodukten liefern primär integrale Kernreaktionsdaten. Zur Untersuchung von Tritium-Emissionen bei (p,t)-, (d,t)- und (α ,t)-Prozessen an Al, V und Nb sei auf die Arbeiten von Merkel und Münzel [MER 80], [MER 81] verwiesen. Die radiochemische Untersuchung protoneninduzierter ^7Be -Emissionen bei mittelschweren und schwereren Kernen mit Protonenenergien von bis zu 100 MeV war

Gegenstand einer neueren Arbeit [SCH 93]; Abb 1.3 zeigt einige typische Ergebnisse.

Komplexeilchen wie ${}^6,7\text{Li}$, ${}^{10,11}\text{Li}$, ${}^{10,11}\text{B}$ können radiochemisch nicht identifiziert werden, da sie stabil sind; die Emission von ${}^{10}\text{B}$ konnte durch die Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS) untersucht werden [BOD 93a,b, LAN 95].

Während leichtere Kerne wie die des C,N,O über einen weiten Energiebereich relativ gut untersucht sind, liegen über die *protoneninduzierte ${}^7\text{Be}$ -Emission* schwererer Kerne im höheren Energiebereich $100\text{ MeV} < E < 300\text{ MeV}$ relativ wenige Daten vor. Eine neuere Studie befaßt sich mit (p, ${}^7\text{Be}$)- sowie (p,x) ${}^{22,24}\text{Na}$ -Prozessen an Kernen der Elemente C, N, O, F, Mg, Al, Si, Ca, Ti, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Sr, Y, Zr mit Hochenergieprotonen [SCK 95].

1.1.6 Theoretische Berechnung von Kernreaktionswirkungsquerschnitten

Auf der Grundlage der in 1.1.3 angeführten Modellvorstellungen über Kernreaktionen wurden verschiedene Computerprogramme zur Berechnung von Kernreaktionswirkungsquerschnitten entwickelt. Dabei stellt die getrennte Behandlung niederenergetischer (direkter und Compoundkern-) und hochenergetischer Prozesse (Spallation, Fragmentation) keine große Schwierigkeit dar, da die Modelle hierfür klar definiert sind (Weisskopf-Ewing-, Hauser-Feshbach-, Kaskaden-Verdampfungs-, Excitonmodell). Dagegen existiert noch kein einheitliches Modell zur Beschreibung des Übergangs zwischen Präequilibrium- und Spallationsreaktionen.

Die Vorhersage von integralen Wirkungsquerschnitten zur Emission komplexer Teilchen durch Kernmodellrechnungen ist im Gegensatz zur einfachen Nukleonenemission sehr schwierig, da die Wahrscheinlichkeit für die Clusterbildung im Gleichgewichtszustand schlecht abgeschätzt werden kann; ferner ist bei solchen Prozessen die komplexe Kernstruktur, die bei Rechnungen nur näherungsweise berücksichtigt werden kann, maßgebend. Eine Ausnahme bildet ${}^4\text{He}$, das sich aufgrund seiner extrem hohen Bindungsenergie wie ein einzelnes Nukleon verhält. Dennoch zeigt eine neuere Arbeit [KON 95b], daß eine mit experimentellen Befunden vergleichbare Berechnung von Wirkungsquerschnitten für eine ${}^7\text{Be}$ -Emission mit dem Code ALICE-87 auf der Basis des Präcompoundmodells möglich ist.

Für Anregungsenergien bis zu 30 MeV haben sich statistische Modelle begrenzt geeignet Komplexeilchenemissionen zu berechnen: (n,d)- und (n, α)- Emission konnten zufriedenstellend durch die Hauser-Feshbach-Methode vorhergesagt werden [GRI 79, HAI 81]; im Falle der (n,t)-Reaktion wurden neben reinen Hauser-Feshbach-Rechnungen [SUD 79, QAI 80, WOL 90] auch

Präcompound-Rechnungen [UHL 86, IGN 88, MER 80, MER 81] durchgeführt. α -Emissionen konnten unter Berücksichtigung eines Anteils an direkten Prozessen berechnet werden [QAI 92, QAI 95b]. In vielen Fällen versagt die Hauser-Feshbach-Vorhersage, da die errechneten Werte sehr stark von den experimentell ermittelten abweichen. Beispielhaft hierfür ist die $^{58}\text{Ni}(n,d)^{57}\text{Co}$ -Reaktion [QAI 85] für Neutronenenergien zwischen 6 und 15 MeV.

In dem von M.Blann (1971) [BLA 71] entwickelten und später (1995) verbesserten [BLA 95] Code ALICE werden keine empirischen Parameter benötigt; es gestattet eine a-priori-Vorhersage von Reaktionswahrscheinlichkeiten auf der Basis des Hybrid-Modells. Ähnlich wie das Exciton-Modell nimmt auch das Hybrid-Modell beim Auftreffen des Projektils auf den Kern eine Anfangskonfiguration von Excitonenzuständen (Teilchen-Loch-Paare, die sich oberhalb der Fermi-Energie befinden) an. Durch eine Stoßkaskade entstehen zunehmend komplizierte Excitonenzustände; in jedem dieser Excitonenzustände gibt es eine gewisse Wahrscheinlichkeit für die Emission eines angeregten Nukleons. Die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines Nukleons ist dann die Summe aller Entweichwahrscheinlichkeiten für jeden Excitonenzustand. Im Unterschied zum Exciton-Modell stellt der Zwischenzustand jedoch nicht eine Überlagerung der n-Exciton-Zustands-Wellenfunktionen dar; beim Hybridmodell wechselwirkt jedes Exciton unabhängig von den anderen, ähnlich wie beim Monte-Carlo-Modell (HET-Code, [CLO 88]). In Experimenten fand man gute Übereinstimmungen der durch ALICE 900 berechneten Anregungsfunktionen mit experimentellen Daten [vgl. BOD 93, MIC 84, MIC 85, MIL 92].

Die Vorhersage von Spallations- und Fragmentationsquerschnitten geschieht vielfach durch Monte-Carlo-Methoden (z.B. HET-Code) oder aber durch semiempirische Modelle nach Vorgabe eines funktionalen Ansatzes (a posteriori).

Zur Anwendung von Kernmodellrechnungen für die Vorhersage von integralen Kernreaktions-Wirkungsquerschnitten siehe Kap. 4.

1.2 Techniken zur Kernreaktionsstudie

Bei den experimentellen Techniken zur Erforschung von Kernreaktionsmechanismen und Kernstruktur unterscheidet man grundsätzlich zwischen sogenannten **“on-line”**- und **“off-line”-Methoden**; bei der “on-line”-Erfassung von Kernreaktionsdaten werden Energie und Winkel der emittierten Teilchen durch eine geeignete Meßanordnung während des Teilchenbeschusses untersucht (**“Spektralmessungen”**), wogegen bei der “off-line”-Untersuchung die Kernreaktionsparameter -in der Regel die Eigenschaften des Restkerns- im Anschluß an das Bestrahlungs-

experiment erfaßt werden. Dementsprechend erhält man bei "off-line"-Untersuchungen lediglich streuwinkel- und zeitintegrale Daten.

Spektralmessungen sind sowohl bei der Emission von Neutronen als auch von geladenen Teilchen und Photonen von Interesse; eine Messung der Winkelverteilung von Streuneutronen im Neutronenspektrometer geschieht z.B. durch Anordnung von mehreren NE 213- Neutronenszintillatoren in verschiedenen Winkeln zum einfallenden Primärteilchenstrahl. Die Messung emittierter geladener Teilchen erfolgt mit Hilfe eines Teleskopzählers, bei dem eine aufgrund der kleiner Reaktionsquerschnitte und des relativ hohen Untergrundes erschwerte Identifizierung des zu messenden Teilchens durch Koinzidenz zwischen dünnen dE/dx- (Gaszähler) und dicken E- (Si(Li)-) Detektoren erzielt wird. Generell sind Emissionsspektren von Neutronen und geladenen Teilchen im Hinblick auf Kernreaktionsstudien recht aussagekräftig, während die "on-line"- γ -Spektrometrie über Kernstrukturen mehr Aufschluß gibt als Teilchenspektren.

Das Prinzip der häufig angewandten **Aktivierungstechnik** ist die Erzeugung eines radioaktiven Produkts durch einen Kernprozeß; hierbei können sowohl der Restkern als auch die emittierten Teilchen, falls diese radioaktiv sind wie z.B. ^3H ($T_{1/2}=12,3$ a) und ^7Be ($T_{1/2}=53,3$ d), erfaßt werden. Die Charakterisierung des radioaktiven Produkts ist oft durch zerstörungsfreie Messungen möglich; bei hoher Matrixaktivität ist jedoch eine radiochemische Trennung erforderlich.

Begrenzten Einsatz in der Kerndatenmessung findet die **Massenspektrometrie (MS)**, die sowohl die Bestimmung von stabilen als auch von radioaktiven Produkten erlaubt. Man unterscheidet ein statisches ("Batch mode") und ein dynamisches ("Fractional relative measurement") Verfahren; im dynamischen Verfahren ist die Bestimmung der relativen Zahl der Teilchen als Funktion der Zeit und der Temperatur unter Anwendung eines Quadrupol-Massenspektrometers möglich. Die Massenspektrometrie eignet sich in der Kerndatenbestimmung insbesondere zur Erfassung von Edelgasen oder Metallionen. Die massenspektrometrische Heliumgasanalyse wird sogar zur Neutronenflußbestimmung verwendet.

Die **Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS)** beinhaltet die Bestimmung von Isotopenverhältnissen unter Anwendung eines Beschleunigers und wird in der Kerndatenbestimmung zur Erfassung langlebiger Radioisotope wie ^{14}C ($T_{1/2}=5730$ a), ^{10}Be ($T_{1/2}=1,6\cdot 10^6$ a), ^{26}Al ($T_{1/2}=7,16\cdot 10^5$ a) und ^{129}I ($T_{1/2}=1,6\cdot 10^7$ a) eingesetzt.

1.3 Radiochemische Trennungen

Der Einsatz radiochemischer Trennungen bei Kernreaktionsstudien ist bei Untersuchungen von Kernprozessen kleiner Ausbeute, bei der Suche nach kurzlebigen Produkten sowie bei der Herstellung von geeigneten Meßpräparaten erforderlich. Kriterien für eine gute radiochemische Trennung sind vor allem eine hohe Dekontamination von radioaktiven Verunreinigungen, eine hohe chemische Ausbeute sowie -insbesondere bei kurzlebigen Produkten- Einfachheit und Reproduzierbarkeit. Als Trennmethoden kommen sowohl klassische (Fällung, Mitfällung, Adsorption, Solventextraktion) als auch moderne chromatographische Verfahren zum Einsatz.

1.3.1 Ionentrennungen durch Hochleistungs-Flüssigkeits-Chromatographie

Allgemeines

Wie allen chromatographischen Verfahren, so liegt auch der Hochleistungs-Flüssigkeits-Chromatographie (engl. High Performance Liquid Chromatography, HPLC) ein System aus einer stationären Hilfsphase zugrunde, die von einer mobilen Phase durchströmt wird. Die stationäre Phase stellt, in ein Rohr eingeschlossen, die Trennsäule dar, während die mobile Phase aus einer Lösung fester oder einem Gemisch flüssiger Substanzen besteht. Mit Hilfe der HPLC lassen sich Gemische trennen (möglich vom submikroanalytischen bis in den präparativen Bereich), Komponenten identifizieren als auch quantitativ bestimmen [SCW 82, WEI 91]. Die Identifikation von Bestandteilen kann grundsätzlich rein empirisch (Vergleich mit Standards) oder durch Zuordnung von Soluteigenschaften zu Retentionswerten erfolgen. Eine quantitative Bestimmung ist mit Hilfe von Detektoren möglich. Eine flüssigkeitschromatographische Trennsäulenfüllung besteht in der Regel aus einem hochporösen Trägermaterial, welches auf seiner Oberfläche die eigentliche trennwirksame stationäre Phase trägt. Als mobile Phase kommen Flüssigkeiten (engl. liquid chromatography, LC) oder überkritische Fluide (engl. supercritical fluid chromatography, SFC) in Frage.

Bei einer chromatographischen Trennung durchströmt die mobile Phase (Eluens) mit konstanter Flußrate v (ml/min) die mit Füllmaterial, welches die stationäre Phase trägt oder enthält, gepackte Trennsäule. Zu einem Zeitpunkt $t=0$ wird die Probe unmittelbar am Säulenanfang in die mobile Phase gegeben und von diesem durch die Säule transportiert. Durch unterschiedlich starke Wechselwirkung mit der stationären Phase ist die Verweildauer in oder an der stationären Phase für unterschiedliche Moleküle oder Ionen verschieden groß, so daß die einzelnen Komponenten räumlich und zeitlich getrennt nacheinander die Säule verlassen (eluieren). Durch

geeignete Detektion lässt sich ein Chromatogramm aufzeichnen, in der die eluierenden Komponenten als Peaks sichtbar werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wird die HPLC zur Trennung von Ionen in wässrigen Systemen mit einem Eluenten konstanter Konzentration (isokratische Ionen-HPLC) angewandt. Grundsätzlich kann es sinnvoll sein (z.B. bei sehr großen Retentionszeitunterschieden der Komponenten), die Eluentenkonzentration oder gar -zusammensetzung während der Trennung kontinuierlich zu ändern. Man spricht dann von einer Gradientenelution. Die wichtigsten Parameter für die chromatographische Trennung sind die **Auflösung α**

$$\alpha = 2 \frac{\Delta t}{(b_A + b_B)} , \quad (1.6)$$

der **Tailingfaktor f_T**

$$f_T = \frac{y}{x} , \quad (1.7)$$

und die Anzahl der theoretischen Böden **N** [ACD 91, LNY 92].

$$N = 16 \left(\frac{t_{ms}}{b} \right)^2 \quad (1.8)$$

Hierbei sind Δt der Peakabstand, b die Peakbreite, x die Strecke eines vom Peakmaximum auf die Basislinie gefällten Lotes zur Peakfront, y die Strecke vom Lot zum Peakende und t_{ms} die Retentionszeit. Ein idealer, unverzerrter Peak besitzt nach den Strömungs- und Diffusionsgesetzen die Form einer Gaußkurve (Abb. 1.4).

Die chromatographischen Trennparameter sind stets von der Arbeitstemperatur abhängig [MST 94]. Für die in dieser Arbeit verwendete analytische Trennsäule wurden die Trennparameter α und N bestimmt (Kap. 3.6.2).

Abtrennung von Natrium und Beryllium aus Nebengruppenmetalltargets

Die analytische Abtrennung von Na und Be geschieht zweckmäßig mit Hilfe von Kationenaustauschern, da anionische Austauscherharze Be in Anionenform nur ungenügend zu binden vermögen [KKI 89]. Die Kationen-HPLC bietet die Möglichkeit einer simultanen Abtrennung kationischer Aktivitäten von geträgerten ^7Be - und $^{22,24}\text{Na}$ -Aktivitäten, die nach der Trennung γ -spektrometrisch bestimmt werden können.

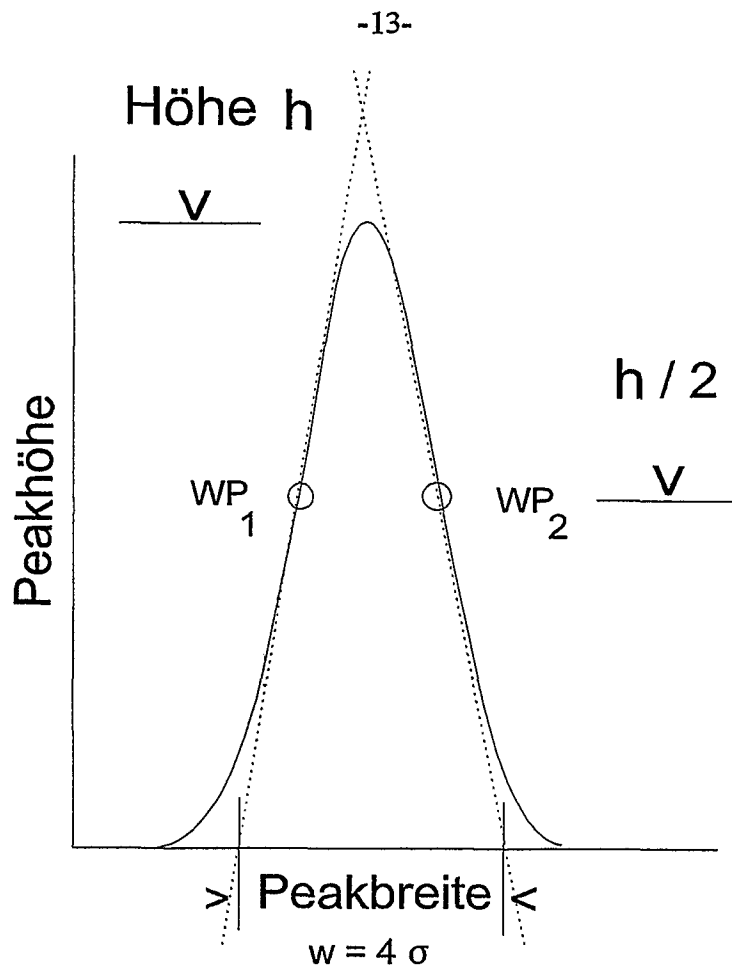


Abb 1.4: Idealer Verlauf eines unverzerrten Peaks (Gaußkurve)

Dies ist sowohl im analytischen (μg -Mengen) als auch im semipräparativen (mg -Mengen) Maßstab möglich. Da bei Probenvorbereitung und Trennung stets Verluste auftreten, ist die Zugabe einer definierten Be-Trägermenge notwendig, um anschließend auf Trennausbeute zu korrigieren. Trägerfreie Kationen liefern häufig schlecht reproduzierbare chromatographische Trennparameter, weshalb auch die Übergangsmetallionen zu trägern sind.

Zur Trennung höher geladener Nebengruppenmetall-Kationen ist die Verwendung komplexbildender Eluenten erforderlich, da die Ionen aufgrund einer hohen Ladungsdichte praktisch auf der Säule haften bleiben [ACD 91]; häufig werden mehrbasige Carbonsäuren eingesetzt. Durch die Komplexbildung wird die effektive Ladungsdichte der Metallionen vermindert, so daß diese normal eluieren. Zur Trennung von Erdalkali- und Übergangsmetallkationen mit Hilfe von Carbonsäureeluenten finden sich zahlreiche Applikationen und Arbeiten: Zur Trennung mehrerer hundert mg Lanthanoiden wurde beispielsweise eine HPLC unter Verwendung von Radiotracer entwickelt [QAI 79]. Eine spezielle Kationen-HPLC-Methode wurde in der Umweltchemie [REI 88], in der Erzanalyse [YAN 88] und in der Analyse von metallischen Verunreinigungen in Kohle,

Additiven, Flugaschen, Impaktfilterstäuben aus Kohlekraftwerken [KOE 88] vorgestellt. Ferner wurden HPLC-Methoden für die Untersuchung von Wein und Trinkwasser, für die Spurenanalyse toxischer Substanzen in der Pathologie [SCW 90, DRA 86] und für die Biotechnologie [HAC 90] entwickelt. Andere Studien konzentrierten sich auf den Vergleich verschiedener Eluentien und chromatographischer Bedingungen für ein gegebenes Trennproblem [YAN 89, KON 88], der Funktion von Eluentien in der konduktometrischen Bestimmung von Erdalkali- oder zweiwertigen Übergangsmetallkationen [FRA 87, SCÄ 88] oder Selektivitäts- und Detektionsoptimierungen [AHU 89].

1.4 Bildung von Aktivierungsprodukten in der Materie

1.4.1 Wechselwirkung von geladenen Teilchen mit Materie

Die Strahlenergie am Target wird in der Folienstapeltechnik aus der Einschußenergie errechnet. Grundlage für diese sog. Energiedegradationsberechnung sind die Regeln der Elektrodynamik für die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Projektil und Targetkern. Der Energieverlust des Protonenstrahles beim Durchdringen von Materie wird durch die Gleichung von Bethe und Bloch [MAR 73] beschrieben. Dabei wird angenommen, daß die kinetische Energie der Geschossteilchen in erster Linie durch inelastische Streuung an den Hüllenelektronen der Targetatome dissipiert. Die von Williamson et al. [WLS 66] modifizierte Gleichung berücksichtigt ferner die Verminderung der mittleren Projektilladung bei niedriger Teilchenenergie durch Rekombination sowie die Nichtteilnahme der inneren Hüllenelektronen am Stoßprozeß.

1.4.2 Berechnung der gebildeten Radionuklidaktivität

Die Geschossteilchen verlieren beim Eintritt in das Targetmaterial Energie. Da der Wirkungsquerschnitt auch Energieabhängig ist, muß die Radionuklidaktivität zunächst differentiell, d.h. theoretisch für ein infinitesimales Energieintervall dE , praktisch für ein hinreichend kleines Intervall ΔE (häufig 1 MeV) berechnet werden. Die produzierte Nuklidaktivität erhält man für ein 'dickes Target' dann durch Integration innerhalb des Energieintervalls zwischen Eintritts- und Austrittsenergie bzw. durch Aufsummieren der Werte für die Intervalle ΔE . Die Beziehung für die Aktivitätsproduktion erhält man aus der Aktivierungsgleichung (1.9) durch Modifikation für einen energieabhängigen Wirkungsquerschnitt:

$$\frac{dA}{dE} = \frac{L}{M} \cdot H \cdot \Phi \cdot \left(\frac{dE}{d(\rho x)} \right)^{-1} \sigma(E) (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.9a)$$

M: Atommasse, L: Loschmidt-Zahl, ρ : Dichte des Targetmaterials.

Der Integrand $dE/d(\rho x)$ heißt Massenbremsvermögen und kann Tabellenwerken entnommen werden [WLS 66]. Vergleichbare Produktaktivitäten erhält man für den Sättigungswert ($t \rightarrow \infty$) oder für eine Standardzeit (z.B. für 1 Stunde Bestrahlungsdauer).

$$A = \frac{N_L}{M} H I (1 - e^{-\lambda t}) \int \left(\frac{dE}{d(\rho x)} \right)^{-1} \sigma(E) dE \quad (1.9b)$$

1.5 Protonenstrahlentherapie

1.5.1 Allgemeines

Unter Strahlentherapie versteht man die Zerstörung von Tumorgewebe durch γ - oder Korpuskularstrahlung wie Neutronen-, Protonen oder Schwerionenstrahlung. Die Strahlentherapie mit beschleunigten Ionen wurde zuerst von WILSON (Berkeley, 1946) vorgeschlagen [WIS 46]; die erste therapeutische Anwendung von Ionenstrahlen am Menschen war die pituitariale Hormonsuppression bei der Behandlung von Patienten mit metastasierendem Brustkarzinom [LAW 57]. Heute gibt es weltweit etwa 20 Zentren für die Therapie mit geladenen Teilchen (Tab.1.1), weitere Anlagen sind in Planung [vgl. GDM 90, MNT 91, BAH 93, SIS 94, SCR 95, JNG 95, LIN 95]. Aufgrund der steigenden Verfügbarkeit von Gamma-Schneidern und für stereotaktische Anwendungen modifizierten Linearbeschleunigern, ist die Protonentherapie von Mammakarzinomen nur noch von geringem Interesse, während maligne Melanome der Aderhaut, des Ciliariskörpers, Chondrosarkome des Schädels und des Halswirbels sowie Hirntumore heute noch routinemäßig protonenstrahlentherapeutisch behandelt werden [GOI 83, LST 90, SUI 90, COS 92].

Kurz- und längerfristigen Folgen einer strahlentherapeutischen Behandlung sowie Nebenwirkungen z.B. auf das zentrale Nervensystem wurden untersucht und diskutiert [AST 90, LST 90, URI 92]; dennoch ist die Protonentherapie oft die Methode der Wahl zur Behandlung von Tumoren in der Umgebung kritischer anatomischer Strukturen.

Tab. 1.5: Übersicht über Therapiezentren mit geladenen Teilchen weltweit (Stand: Jan. 1994)

Zentrum	Ort	Inbetriebnahme, Teilchenart	Behandelte Patienten	Stand
Berkeley 184	CA., U.S.A.	1954-57, p	30	Jun. 91
Berkeley	CA., U.S.A.	1957-92, He	2054	
Uppsala	Schweden	1957-76, p	73	
Harvard	MA., U.S.A.	1961, p	6010	Dez. 93
Dubna	Russland	1967-74, p	84	
Moskau	Russland	1969, p	2550	Okt. 92
Los Alamos	NM., U.S.A.	1974-82, π^-	230	
St. Petersburg	Russland	1975, p	719	Jun. 91
Berkeley	CA., U.S.A.	1975-92, Si	433	Jun. 91
Chiba	Japan	1979, p	86	Jun. 93
TRIUMPF	Canada	1979, π^-	314	Jun. 93
PSI (SIN)	Schweiz	1980-93, π^-	503	Jun. 93
PMRC, Tsukuba	Japan	1983, p	354	Sept. 93
PSI (SIN)	Schweiz	1984, p	1363	Mai 93
Dubna	Russland	1987, p	24	Aug. 92
Uppsala	Schweden	1989, p	34	May 93
Clatterbridge	England	1989, p	463	Jan 94
Loma Linda	CA., U.S.A.	1990, p	682	Dez. 93
Louvain-la-Neuve	Belgien	1991, p	21	Nov. 93
Nice	Frankreich	1991, p	216	Apr. 93
Orsay	Frankreich	1991, p	235	Mai 93
N.A.C	Rep. Südafrika	1993, p	98	Sept. 95
Indiana Cyclotron	IN., U.S.A.	1993, p	1	Dez. 93

1.5.2 Therapeutische Besonderheit des Protonenstrahls

Seit der Einführung der klinischen Radiotherapie ist man bemüht, das Bestrahlungsvolumen möglichst auf das erkrankte Gewebe zu begrenzen und gesundes Gewebe minimal zu belasten. Mit einem Strahl aus geladenen Teilchen wie Protonen, α -Teilchen, μ - und π -Mesonen und schweren Ionen [LON 84] kommt man diesem Ziel heute sehr nahe, da die Eindringtiefe eines Ionenstrahls sehr genau durch die Primärenergie des Strahls definiert werden kann. Durch den

sogenannten Bragg-Peak-Effekt kommt es ferner zu einer fast vollständigen Energieabsorption am Ort der Teilchenreichweite, so daß die Energiedosis größtenteils auf das Tumorgewebe limitiert wird und das umliegende gesunde Gewebe nur eine vergleichsweise geringfügige Strahlenbelastung erfährt. Man verwendet in der Ionenstrahlentherapie heute vornehmlich Protonen der kinetischen Energie 50 bis 250 MeV und schwere Ionen [ARC 73, LON 75, BOO 77, WAG 82, CAO 87, KRA 90] in der sogenannten 'spot-scanning' -Technik [LEN 88, BLT 90a, BLT 90b].

Während die energieübertragenden Wechselwirkungen von Photonen (Comptonstreuung, Photoeffekt, Paarbildung) mit Materie nur stochastischer Natur sind und Ionisationen statistisch erfolgen, wirken geladene Teilchen direkt ionisierend und besitzen eine definierte Reichweite. Elektronen können aufgrund ihrer kleinen Masse schnell auf sehr hohe Geschwindigkeiten ($> 1\text{MeV}$) beschleunigt werden; ihre Eindringtiefe ist jedoch vergleichsweise gering, da sie einer starken lateralen Streuung unterliegen. Protonen und schwerere Ionen hingegen erfahren aufgrund ihrer hohen Masse kaum eine seitliche Streuung; die Tiefe-Dosis-Kurve von Protonen und allen schwereren Ionen zeigt zu Beginn eine langsame Zunahme, dann einen steilen Anstieg und Abfall im Bereich der Reichweite-Tiefe (Abb 1.5). Die biologische Wirkung der einzelnen Strahlungsarten wird durch den Energieverlust je Längeneinheit (Linear Energy Transfer, LET), äquivalent mit der 'Stopping power', charakterisiert. Der LET ist eine Funktion der Protonenenergie; bei hohen Energien ist er relativ klein und nimmt mit dem Energieverlust des Strahls rasch zu, so daß unterhalb einer gewissen Schwelle die Energiedemission sprunghaft ansteigt. Der maximale LET von Elektronen beträgt etwa $30\text{ keV}/\mu\text{m}$, für Protonen um die $100\text{ keV}/\mu\text{m}$ und für schwerere Ionen über $1000\text{ keV}/\mu\text{m}$.

1.5.3 Die Bedeutung nuklearer Daten

Die Zertörung des Tumors beruht hauptsächlich auf der chemischen Wirkung der Teilchenstrahlung im Gewebe; der weitaus größte Teil der Strahlenergie wird in chemischen Prozessen umgesetzt, weshalb Kernreaktionen in der Therapie nur eine untergeordnete Rolle spielen und zur Therapieoptimierung in erster Linie atomare und molekulare Daten erforderlich sind. Zur Berechnung von Gewebe- und Kollimatorenaktivierung sowie der dem Patienten zugeführten Organdosis jedoch ist die Kenntnis von Kernreaktionsdaten von gewisser Bedeutung; so wäre es denkbar, die im Gewebe erzeugte Aktivität an Positronenstrahlen wie ^{15}O und ^{11}C mit Hilfe der Emissionstomographie (PET) nach der Strahlenbehandlung zu erfassen und so die Gewebestrahlungsdosis, verursacht durch den Zerfall einerseits und die Bestrahlung andererseits, zu bestimmen.

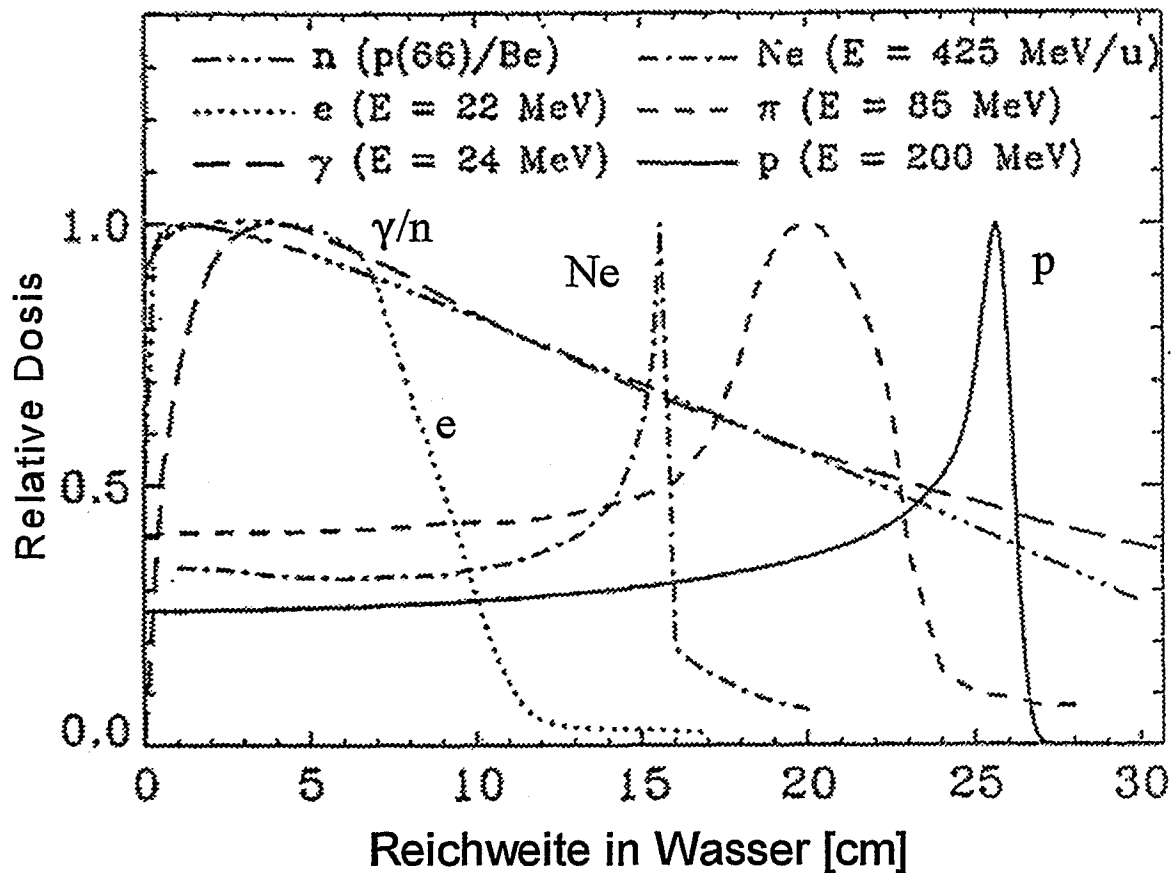


Abb 1.5: Abhängigkeit der absorbierten Energiedosis von der Strahleintrittstiefe in Wasser

White et al. [WHI 94] entwickelten kürzlich einen All-particle-Computer-Code (PEREGRINE), mit dessen Hilfe die Dosisverteilung für Protonenstrahlen im bestrahlten Gewebe berechnet werden kann. Dazu werden evaluierte Wirkungsquerschnitte für die Reaktion von Protonen mit biologisch relevanten Elementen für Energien bis 250 MeV benötigt; tatsächlich existieren jedoch bis heute nur relativ wenige experimentelle Daten zu (p,x)-Prozessen an biologisch relevanten Elementen wie H, O, C, N, Ca und P im therapielevanten Energiebereich 50-300 MeV, so daß sich solche Dosisberechnungen im wesentlichen auf die Ergebnisse von a-priori-Kernmodellrechnungen stützen [WAM 92, WHI 94, CHD 94], die aber gerade im intermediären Energiebereich nur ungenaue Abschätzungen liefern. Ferner ist die Kenntnis von winkelabhängigen Reaktionswirkungsquerschnitten der bei höheren Energien auftretenden multiplen Teilchenemission (Spallation) von Bedeutung, da sowohl die emittierten Teilchen als auch die Rückstoßwirkung des Restkerns die Verteilung der Energiedosis im Gewebe beeinflusst.

Außer der Gewebeaktivierung ist die Aktivierung von Apparaturteilen wie z.B. der Strahlkollimatoren, die üblicherweise aus Messing bestehen, interessant [QAI 91], um die dem Bedienungspersonal zugeführte Dosis durch die im bestrahlten Material gebildeten Aktivierungsprodukte abzuschätzen. Mangels nuklearer Daten ist es schwierig, eine optimale Abschirmung für einen neuen Beschleuniger-Therapieplatz zu konzipieren; dabei spielen auch die im Strahlrohr sekundär erzeugten Hoch- und Mittlereenergieneutronen eine Rolle. Die Kosten der Abschirmungseinrichtung haben einen beträchtlichen Anteil an den Gesamtkosten des Therapieplatzes; mangels guter Kerndaten muß das Strahlendosisniveau näherungsweise errechnet werden, wobei man aus Sicherheitsgründen zur Überschätzung tendiert, was sich in erhöhten Kosten niederschlägt.

2. Problemstellung

Bei der Tumorbehandlung mit hochenergetischen Protonenstrahlen treten, neben chemischen und Streuwechselwirkungsprozessen, protoneninduzierte Kernreaktionen mit den im menschlichen Gewebe enthaltenen chemischen Elementen auf. Ferner entstehen beim Auftreffen des Therapiestrahls auf Kollimatormaterialien kurz- und längerlebige Aktivierungsprodukte von mittlerer Kernmasse. Um auf der Basis von Modellrechnungen zu einer präzisen Gewebeaktivierungs- und Dosisabschätzung zu gelangen, bedarf es einer genauen Kenntnis der bei der Strahlentherapie stattfindenden Kernprozesse und der entsprechenden Kernreaktionsdaten. Obwohl sich bereits zahlreiche Arbeiten mit (p,x)-Prozessen an leichten bis mittelschweren Kernen befaßten, sind vorhandene Datensätze - speziell für biologisch-apparativ relevante Elemente im Protonenenergiebereich von 50 bis 300 MeV- noch lückenhaft. Bei den hier in Frage kommenden Kernreaktionsprodukten handelt es sich namentlich um kurzlebige Positronenstrahler (^{11}C , ^{15}O , ^{18}F etc.), längerlebige Aktivierungsprodukte wie ^7Be , ^{22}Na , ^{24}Na sowie anderen Restkernen von mittlerer Halbwertszeit ($3\text{ a} > T_{1/2} > 1\text{ d}$).

Die protonen- und neutroneninduzierte Emission von ^7Be im nieder- und intermediären Energiebereich ist seit einigen Jahren Gegenstand radiochemischer Grundlagenforschung. Protoneninduzierte Emission des Komplextteilchens ^7Be ist im Bereich hoher Protonenenergien von etwa 300 MeV bis zu einigen GeV gut untersucht. Auch die ^7Be -Emission bei Energien unterhalb 100 MeV wurde untersucht. Relativ wenig ist dagegen im Energiebereich von 100 bis 300 MeV bekannt. Insbesondere sind noch keine Wirkungsquerschnitte für Reaktionen an P-, S-, Cl-, Ca- und Zn-Kernen bestimmt worden; ferner sind Fe und Cu hinsichtlich der ^7Be -Emission kaum untersucht, und die Bildung von ^{22}Na und ^{24}Na ist im therapielevanten Energiebereich wenig erforscht; ähnliches gilt für längerlebige Nebengruppenmetall-Aktivierungsprodukte, die vor allem bei der Kollimatoraktivierung eine Rolle spielen.

Ziel dieser Arbeit ist daher die Bestimmung von (p, ^7Be)-, (p,x) ^{22}Na -, (p,x) ^{24}Na - Wirkungsquerschnitten an den biologisch-strahlentherapeutisch relevanten Elementen C, N, O, F, Na, Al, Si, P, S, Cl, Ca, Fe, Cu, Zn sowie von Wirkungsquerschnitten weiterer (p,x)-Aktivierungsprodukte an Ca, Fe, Cu und Zn mittels Aktivierung geeigneter Targetmaterialien in der Folien-Stapel-Technik. Aufgrund der für Elemente im mittleren und höheren Massebereich zu erwartenden kleinen Wirkungsquerschnitten für die Emission von ^7Be bzw. die Bildung der Natriumisotope ^{22}Na und ^{24}Na ist für solche Elemente eine radiochemische Abtrennung der gebildeten ^7Be -, ^{22}Na - und ^{24}Na -Aktivitäten aus den durch andere Reaktionskanäle stark aktivierten Targets notwendig. Anschließend sollen die experimentellen Kernreaktionswirkungsquerschnitte mit den

Ergebnissen von ALICE-Präcompound-Kernmodellrechnungen verglichen werden, um einige Aussagen über die Reaktionsmechanismen zu erlauben.

Mit Hilfe der ermittelten Kerndaten sollen dann sowohl die im Kollimatorenmaterial erzeugten Radionuklidaktivitäten als auch die im Gewebe-Zielvolumen gebildeten Aktivitäten und durch Radionuklide zugeführten Energiedosen abgeschätzt werden.

3. Experimentelles

3.1 Bestrahlungen

3.1.1 Targetmaterialien

Um Reaktionen an einem gewünschten Kern studieren zu können, muß dieser entweder in der Form des reinen Elements oder einer Verbindung bestrahlbar sein; der verwendete Targetkörper darf sich im Teilchenstrahl nicht verändern. Veränderungen am Target können entweder durch strahlenchemische (Zersetzung) oder durch thermische (Zersetzung, Schmelzen, Verdampfen) Prozesse entstehen. Bei der Wahl von chemischen Verbindungen oder Legierungen muß vorher abgeschätzt werden, welchen Einfluß der Bindungspartner auf die zu untersuchenden Kernreaktionen hat. Tab 3.1 zeigt die Q-Werte für die in dieser Arbeit betrachteten ($p, {}^7\text{Be}$)-Reaktionen.

Die Elemente C, Si, Al, Fe, Cu, Zn konnten direkt in elementarer Form bestrahlt werden, während andere Kerne in Form ihrer Verbindungen eingesetzt wurden. In der vorliegenden Arbeit wurden neben den in früheren Studien [z.B. SCK 95] erfolgreich eingesetzten hochschmelzenden Keramiken und Kristallen Si_3N_4 , SiO_2 , NaF, CaF_2 erstmalig die Kupferverbindungen Cu_3P , Cu_2S , und CuCl verwendet, deren strahlenchemische und thermische Beständigkeit in Vorversuchen am Niederenergiezyklotron CV28 der KFA Jülich bei Protonenenergien von $E_p = 20$ MeV überprüft wurde. Während Cu_2S und Cu_3P Resistenz gegenüber Protonenströmen von bis zu 500 nA zeigten, begann sich CuCl bereits bei 100 nA Strahlstrom zu zersetzen, was weniger auf thermische als auf strahlenchemische Effekte zurückzuführen war, so daß die Strahlströme in den einzelnen Bestrahlungsexperimenten 70 nA ($\Delta \sim 1 \text{ Wcm}^{-2}$) nicht überschreiten sollten. Für die Wahl der Kupferverbindungen sprachen vor allem der relativ kleine Cu-Reaktionswirkungsquerschnitt für die Emission von ${}^7\text{Be}$ und die Möglichkeit der einfachen chemischen Cu/Be-Trennung. Viele Targetmaterialien zeigten leichte Veränderungen nach den Bestrahlungen, die jedoch unwesentlich waren, da sich bei Rückwägungen keine nennenswerten Masseverluste zeigten. So zeigten Natrium- und Calciumfluorid Verfärbungen an der Stelle des Strahldurchtritts, die auf die von den beschleunigten Protonen im Kristall erzeugten Gitterfehlstellen zurückzuführen waren, während Natriumchlorid und die Kupfersalz-Targets an der Oberfläche der Radiolyse unterlagen und sich dadurch schwarz färbten. In Tabelle 3.2 sind die in dieser Arbeit verwendeten Targetmaterialien mit ihren genauen Spezifikationen aufgeführt. Die mit einem Stern (*) markierten Substanzen wurden in der Zentralabteilung der Chemischen Analyse (ZCH) des Forschungszentrums Jülich analysiert, um den Gehalt an den leichten Elementen C, N, O, Li, Be, B zu bestimmen. Geschliffene Einkristalle wurden direkt als UV-Fenster vom Hersteller bezogen; Preßlinge wurden unter Anwendung von 100 kN/cm^2 Preßdruck hergestellt.

Tab. 3.1: Energiebilanzen einiger der in dieser Arbeit betrachteten (p,⁷Be)-Reaktionen

Nuklid	Häufigkeit [%]	Q-Wert [MeV]	Coulomb- barriere [MeV]	Reaktions- Schwelle [MeV]	Produkt- kern
¹² C	98,90	-22,56	2,03	26,48	⁶ Li
¹³ C	1,10	-20,26	1,99	23,82	⁷ Li
¹⁴ N	99,60	-10,46	2,29	13,51	⁴ He
¹⁵ N	0,37	-19,72	2,25	23,30	⁸ Be
¹⁶ O	99,76	-25,29	2,53	29,42	¹⁰ B
¹⁷ O	0,04	-17,95	2,50	21,52	¹¹ B
¹⁸ O	0,20	-22,63	2,46	26,35	¹² B
¹⁹ F	100,00	-13,09	2,73	16,52	¹³ C
²³ Na	100,00	-17,20	3,19	21,14	¹⁷ O
²⁷ Al	100,00	-8,37	3,62	12,32	²¹ Ne
²⁸ Si	92,23	-24,78	3,87	29,54	²² Na
²⁹ Si	4,67	-20,84	3,83	25,39	²³ Na
³⁰ Si	3,10	-24,49	3,80	29,11	²⁴ Na
³¹ P	100,00	-19,73	4,04	24,41	²⁵ Mg
³² S	95,02	-22,22	4,27	27,20	²⁶ Al
³³ S	0,75	-17,87	4,24	22,66	²⁷ Al
³⁴ S	4,21	-21,56	4,21	26,41	²⁸ Al
³⁵ Cl	75,77	-15,60	4,44	20,48	²⁹ Si
³⁷ Cl	24,23	-17,29	4,37	22,14	³¹ Si
⁴⁰ Ca	96,94	-18,89	5,05	24,42	³⁴ Cl
⁵⁴ Fe	5,80	-20,26	6,07	26,71	⁴⁶ V
⁵⁶ Fe	91,70	-19,87	6,01	26,23	⁵⁰ V
⁵⁷ Fe	2,20	-16,46	5,98	22,73	⁵¹ V
⁵⁸ Fe	0,30	-19,19	5,95	25,48	⁵² V
⁶³ Cu	69,17	-13,88	6,50	20,60	⁵⁷ Fe
⁶⁵ Cu	30,83	-15,08	6,44	21,76	⁵⁹ Fe

Tab. 3.2: Targetmaterialien für Bestrahlungen mit Hochenergie-Protonen

Material	Element	Zusammensetzung [%]	Form	Hersteller
Graphit EK 98	C	99,999	Pellet	GOODFELLOW
Si ₃ N ₄	Si	60,1	Pellet	GOODFELLOW
	N	39,9		
SiO ₂	Si	46,7	Einkristall	HERAEUS
	O	53,3		
Aluminium	Al	99,999	Folie	GOODFELLOW
Silicium	Si	99,999	Pellet	GOODFELLOW
NaCl *	Na	39,3	Pulver	MERCK
	Cl	61,13		
NaF	Na, F	99,95	Einkristall	MERCK
CaF ₂	Ca, F	99,96	Einkristall	MERCK
Cu ₃ P *	Cu	82,9	Pulver	CERAC
	P	14,5		
	C	0,026		
	N	0,0049		
	O	1,338		
Cu ₂ S *	Cu	79,4	Pulver	CERAC
	S	19,7		
	C	<0,005		
	N	0,0023		
	O	1,088		
	Li	<0,0005		
	Al	<0,0030		
	B	<0,0010		
	Be	<0,0001		
CuCl *	Cu	63,7	Pulver	CERAC
	Cl	20,80		
	N	0,0029		
	O	0,7156		
Eisen	Fe	99,5	Folie	GOODFELLOW
Kupfer	Cu	99,9	Folie	GOODFELLOW
Zink	Zn	99,999	Folie	GOODFELLOW
Messing	Cu	63	Folie	GOODFELLOW
	Zn	37		

* Analyse laut ZCH, KFA Jülich.

3.1.2 Bestrahlungsexperimente

Um den Wirkungsquerschnitt einer Kernreaktionen als Funktion der Teilchenenergie zu studieren, wurde die sogenannte Folienstapeltechnik angewandt. Dabei trifft der Protonenstrahl mit fester Einschußenergie auf eine Anordnung hintereinanderliegender Folien oder Pellets. Beim Durchtritt durch einen solchen Folienstapel verliert der Strahl sukzessive an Energie und trifft mit definierter Energie auf ein im Stapel befindliches Target. Um den Strahlstromverlauf innerhalb des Folienstapels zu bestimmen, enthielten die Stapel Monitorfolien aus Aluminium und Kupfer.

Die für diese Arbeit erforderlichen Bestrahlungsexperimente wurden am Hochenergie-Protonenzyklotron des THE SVEDBERG LABORATORIET (TSL), Uppsala, sowie am Hochenergiebeschleuniger des LABORATOIRE NATIONALE SATURNE (LNS), Saclay durchgeführt. Das Zyklotron des TSL lieferte Protonen mit nominellen Energien von 180 und 130 MeV und der Beschleuniger des LNS Einschußenergien > 200 MeV. In den Uppsala-Experimenten mit Einschußenergien < 200 MeV konnten Folienstapel von mehreren cm Länge verwendet werden, so daß ein Experiment mehrere (etwa 4-5) Energiepunkte für ein Element lieferte, während bei den Saclay-Experimenten aufgrund der zu erwartenden hohen Flüsse an sekundären Teilchen nur relativ dünne (1,5 cm) Target-Stapel eingesetzt wurden, die nur höchstens zwei Energiepunkte pro Element ergaben. Abb. 3.1 zeigt den schematischen Aufbau der verwendeten Target-Hülsen für die Uppsala-Bestrahlungen.

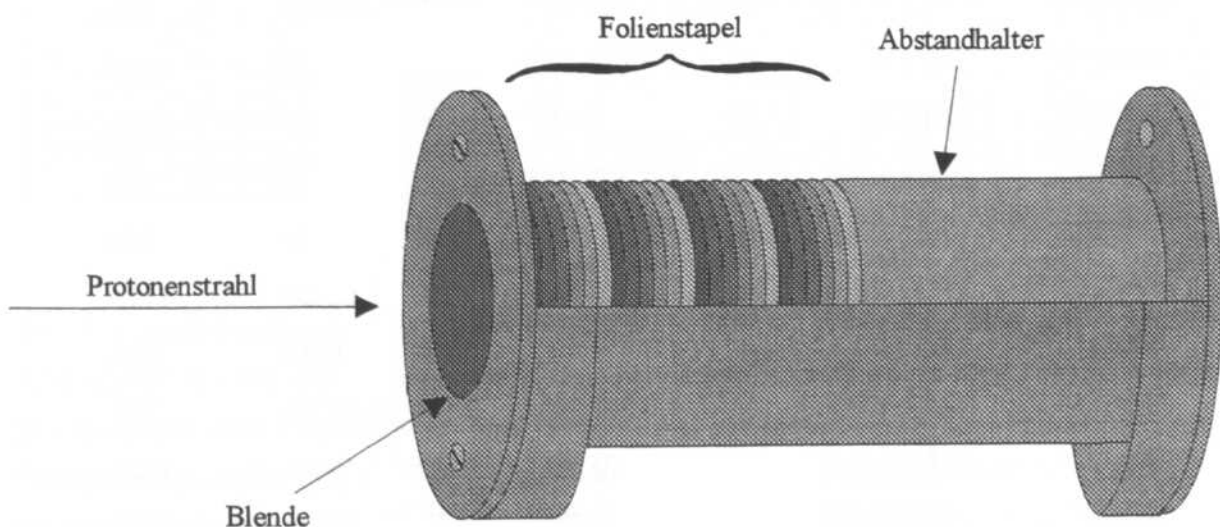


Abb 3.1: Schematischer Aufbau eines Folienstapel-Targets für die Bestrahlung am TSL, Uppsala

3.1.3 Bestrahlungsparameter

Im Rahmen dieser Arbeit wurden 14 Bestrahlungsexperimente durchgeführt (Tab. 3.3); 8 am TSL mit den nominellen Protonenenergien 180 MeV (5 x), 130 MeV (2 x) und 100 MeV, 4 am LNS mit den Energien 250 MeV (2 x) und 350 MeV (2x) sowie 2 am COSY, Jülich (175 MeV). Die Strahlströme betrugen bei den TSL-Bestrahlungen etwa 50-80 nA, bei den LNS-Bestrahlungen 0,5-1 nA, bei den COSY-med-Experimenten etwa 9 pA. Strahlstromschwankungen konnten vernachlässigt werden, da die Dauer solcher Schwankungen sehr viel kleiner war als die Halbwertszeiten der relevanten Nuklide (^{62}Zn , $^{24,22}\text{Na}$, ^7Be). Die Strahleintrittsenergien für das TSL Uppsala wurden mit Hilfe von Flugzeitmethoden bestimmt, während die Energien für die LNS-Bestrahlungen über Monitorreaktionen ermittelt wurden. Die integralen Protonenflüsse wurden über Monitorreaktionen bestimmt.

Tab. 3.3: Parameter der Protonenbestrahlungsexperimente

Experiment	Einschuß- energie [MeV]	Protonenfluß [s ⁻¹]	Bestrahlungs- ende	Bestrahlungs- dauer [min]
UPPS07	162,5 ± 1,0	(4,50 ± 0,32) · 10 ¹¹	17.03.93,08:50	312
UPPS09	175,6 ± 1,0	(2,80 ± 0,06) · 10 ¹¹	17.11.93,06:00	204
UPPS10	174,7 ± 1,0	(4,26 ± 0,55) · 10 ¹¹	20.01.94,06:13	382
SACL01	252 ± 2	(5,72 ± 1,50) · 10 ⁹	06.10.94,08:04	1992
SACL02	356 ± 3	(3,69 ± 1,20) · 10 ⁹	07.10.94,08:21	1296
UPPS11	178,2 ± 1,0	(3,13 ± 0,39) · 10 ¹¹	29.11.94,23:59	234
UPPS12	136,1 ± 0,5	(4,44 ± 0,58) · 10 ¹¹	22.02.95,01:30	154
SACL03	251,9 ± 2,5	(6,76 ± 0,80) · 10 ⁹	11.07.95,08:00	1120
UPPS13	136,5 ± 0,5	(3,00 ± 0,41) · 10 ¹¹	22.11.95,06:45	525
UPPS14	177,3 ± 0,8	(2,71 ± 0,29) · 10 ¹¹	20.03.96,02:50	255
SACL04	257,6 ± 0,5	(1,42 ± 0,12) · 10 ¹⁰	22.05.96,13:29	1225
UPPS15	97,2 ± 0,3	(2,76 ± 0,33) · 10 ¹¹	16.10.96, 01:19	240
COSY-med 1	175,0 ± 0,8	(4,45 ± 0,04) · 10 ⁷	19.04.96,17:15	10
COSY-med 2	175,0 ± 0,8	(5,24 ± 0,13) · 10 ⁷	19.04.96,18:20	10

Tab. 3.4: Targetanordnung Experiment 'Upps 13' (Ausschnitt aus der Ausgabedatei des PC-Programms "StoppingPower")

Targetanordnung

Upps-13

Projektil-Daten					
Name	Z	M	Anfangs-energie	Gengk	FoZ
H-1	1	1.00728	136,5	10	83

Target-Daten											
Nr.:	Target	Z	M	m	Durchmes-ser	Bez	Flächen-gewicht	mittlere Energie	Eintritts-energie	Austritts-energie	Energie-absorption
			[g/mol]	[g]	[mm]		[g/cm ²]	[MeV]	[MeV]	[MeV]	[MeV]
1	Cu	29	63.5460	0.1612	15.2		8.88E-02	136.32	136.50	136.14	0.36
2	Cu	29	63.5460	0.1612	15.2	C3	8.88E-02	135.96	136.14	135.78	0.36
3	Cu	29	63.5460	0.1612	15.2		8.88E-02	135.60	135.78	135.42	0.36
4	Al	13	26.9820	0.0095	15.2		5.24E-03	135.41	135.42	135.39	0.02
5	Al	13	26.9820	0.9088	15.2	A1	5.01E-01	134.19	135.39	132.99	2.40
6	Al	13	26.9820	0.0095	15.2		5.24E-03	132.98	132.99	132.97	0.03
7	Fe	26	55.8470	0.0346	15.2		1.91E-02	132.93	132.97	132.89	0.08
8	Fe	26	55.8470	0.0346	15.2	F1	1.91E-02	132.85	132.89	132.81	0.08
9	Fe	26	55.8470	0.0346	15.2		1.91E-02	132.76	132.81	132.72	0.08
10	Cu	29	63.5460	0.0861	15.2		4.74E-02	132.63	132.72	132.53	0.20
11	Cu3-P	29	63.5460	0.2581	13.0	P1	1.94E-01	132.13	132.53	131.73	0.80
12	P-Cu3	15	30.9740	0.0419	13.0	P1	3.16E-02	131.65	131.73	131.57	0.15
13	Cu	29	63.5460	0.0861	15.2		4.74E-02	131.48	131.57	131.38	0.20
14	Me-Zn	30	65.3800	0.0572	15.2	M-1	3.15E-02	131.31	131.38	131.25	0.13
15	Me-Cu	29	63.5460	0.0973	15.2	M-1	5.36E-02	131.14	131.25	131.02	0.22
16	Cu	29	63.5460	0.0861	15.2		4.74E-02	130.93	131.02	130.83	0.20
17	Ca-F2	20	40.0800	0.3095	15.2	F1	1.71E-01	130.42	130.83	130.01	0.82
18	F2-Ca	9	18.9984	0.2935	15.2	F1	1.62E-01	129.60	130.01	129.19	0.82
19	Cu	29	63.5460	0.0861	15.2		4.74E-02	129.09	129.19	128.99	0.20
20	Na-F	11	22.9898	0.2801	15.2	N1	1.54E-01	128.61	128.99	128.22	0.77
21	F-Na	9	18.9984	0.2315	15.2	N1	1.28E-01	127.90	128.22	127.57	0.65
22	Cu	29	63.5460	0.0861	15.2		4.74E-02	127.47	127.57	127.37	0.20
23	Cu2-S	29	63.5460	0.2372	13	S1	1.79E-01	126.99	127.37	126.61	0.76
24	S-Cu2	16	32.0600	0.0598	13	S1	4.51E-02	126.50	126.61	126.39	0.23
25	Cu	29	63.5460	0.0861	15.2		4.74E-02	126.29	126.39	126.19	0.20
26	Ca-F2	20	40.0800	0.3095	15.2	F2	1.71E-01	125.77	126.19	125.35	0.84
27	F2-Ca	9	18.9984	0.2935	15.2	F2	1.62E-01	124.93	125.35	124.51	0.84
28	Cu	29	63.5460	0.0861	15.2		4.74E-02	124.41	124.51	124.31	0.20
29	Na-F	11	22.9898	0.2801	15.2	N2	1.54E-01	123.91	124.31	123.52	0.79
30	F-Na	9	18.9984	0.2315	15.2	N2	1.28E-01	123.18	123.52	122.85	0.67
31	Cu	29	63.5460	0.0861	15.2		4.74E-02	122.75	122.85	122.64	0.21

Tab. 3.4 zeigt einen typischen Stapelaufbau für die Bestrahlung am TSL Uppsala. Aufgeführt sind jeweils die Art des Targets, Kernladungszahl und molare Masse des Targetelements, Durchmesser und Bezeichnung des Targets und die errechneten physikalischen Daten Flächenmasse, mittlere Eintritts- und Austrittsenergie sowie die Energieabsorption im Target. Da die zugrunde liegende Gleichung (Kap. 1.4.1) nur die Berechnung von einzelnen chemischen Elementen gestattet, mußten Verbindungen oder Gemische als hintereinander geschaltete Reinelement-Targetsegmente aufgefaßt und entsprechend der elementaren Zusammensetzung berechnet werden.

3.1.4 Energiedegradation

Der in Kap 1.4.1 erwähnte Bethe-Formalismus zum Energieverlust geladener Teilchen wurde von B.Scholten und T.Beth (KFA Jülich/ INC) in ein Iterationsprogramm ("StoppingPower") implementiert, mit dessen Hilfe der Energieverlust eines Projektilstrahles für ein gegebenes Targetelement der Ordnungszahl Z_x , Atommasse M_x und Flächendichte x berechnet werden konnte (Tab. 3.1.2). Verbindungen und Mischungen ABC wurden wie aus einzelnen Reinelement-Schichten A, B, C aufgebaute Materialien behandelt; die Flächendichten der einzelnen Schichten ergab sich aus der Gesamtflächendichte und den Molmassen:

$$\rho(A) = \rho(ABC) \cdot \frac{M(A)}{M(ABC)} \quad (3.1)$$

Prinzipiell hätte man Mischungen und Verbindungen auch als Reinelemente mit einer mittleren Ordnungszahl

$$\bar{Z}(A_n B_m) = \frac{n \cdot Z(A) + m \cdot Z(B)}{n + m} \quad (3.2)$$

berechnen können; es wurde gezeigt, daß eine solche Rechnung in etwa das gleiche Ergebnis für die absorbierte Energie liefert.

Energiedispersion und Winkelverbreiterung des Strahls, wie in den Arbeiten [SCK 95] und [BOD 93a] beschrieben, wurden hier nicht berücksichtigt, da sie für die eingesetzten Targetkerne vernachlässigbar gering waren. Als Protonenenergie am Target wurde der Mittelwert zwischen Folien-Eintritts- und Austrittsenergie definiert; die Unsicherheit für diesen Energiewert ist dann die halbe Differenz zwischen Eintritts- und Austrittsenergie. Eine Fortpflanzung des Fehlers für die Strahleintrittsenergie wurde aufgrund der hohen Protonenenergien vernachlässigt.

3.2 γ -Spektrometrie

3.2.1 Spektrometriesystem

Zur γ -Spektrometrie dienten zwei HPGe-Halbleiterdetektoren der Firma EG&G ORTEC, die über einen Analog-Digital-Konverter (ADC) an einen CANBERRA-4 K- bzw. 16K- Vielkanalimpulshöhenanalysator (MCB = Multi Channel Board) angeschlossen waren, der neben der tatsächlichen Meßdauer (Live Time) und der real verstrichenen Zeit (Real Time) die einzelnen

Impulse pro Kanal registrierte. Das MCB wurde über eine Einsteckkarte durch einen IBM-kompatiblen PC unter dem Programm 'GAMMAVISION' gesteuert. Der Probenabstand vom Detektorkopf wurde so gewählt, daß die Totzeit stets kleiner als 7% war. Auf diese Weise wurden Zählverluste durch zufällige Koinzidenzen vermieden.

Die Spektrenauswertung wurde mit dem Programm GAMMAVISION 1.00 for WINDOWS (EG&G ORTEC) vorgenommen, das eine Auswertung sowohl von Einzel- als auch Doppelpeaks ermöglichte. Es standen zwei Auswerte-Algorithmen zur Verfügung; eine Methode bestand in der Aufsummierung der einzelnen Kanalinhalt unter dem Peak (nur für Singulets) mit Subtraktion des Untergrundes, während die rechnerisch aufwendigere Methode (zur Auswertung von Multipletts) zunächst über der Untergrundlinie eine GAUSS-Kurve an die Peaks anpaßte und diese dann integrierte. Peak-Asymmetrien konnten durch Verschieben der Energieskala in Grenzen korrigiert werden. Mit Hilfe einer Nuklid-Bibliothek wurden die Peaks vom Programm selbständig erkannt und den jeweiligen Nukliden zugeordnet.

3.2.2 Energiekalibration und Ansprechwahrscheinlichkeit

Vor den Messungen mußten mit Hilfe von Eichstrahlern die Energieskala kalibriert und die Detektoransprechwahrscheinlichkeit bestimmt werden. Da die Proben nie näher als 10 cm vom Detektorkopf entfernt waren und die Zählrate durch Erhöhung des Probenabstandes niedrig gehalten wurden, konnten Pile-Up-Effekte und Koinzidenzverluste bei der Spektrometrie vernachlässigt werden. GAMMAVISION 1.00 erlaubte im Gegensatz zu älteren Auswerteprogrammen eine Mehrpunkt-Kalibrierung der Energie mit Errechnung einer Regressionsgeraden. Die Detektoransprechwahrscheinlichkeit ϵ wurde für mehrere Abstände eines Punktstrahlers vom Detektorkopf aus der Peakfläche F , der effektiven Meßzeit t_l (Livetime) und der absoluten Aktivität A_{abs} des Eichstrahlers mit der γ -Emissionshäufigkeit i bestimmt:

$$\epsilon = \frac{F}{t_l \cdot i \cdot A_{abs}} \quad (3.3)$$

Tab 3.5 zeigt die in dieser Arbeit verwendeten γ -Eichstrahler zusammen mit ihren physikalischen Daten. Die Eichpräparate wurden von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt und der Fa. AMERSHAM bezogen.

Tab 3.5: Verwendete γ -Eichstrahler

Nuklid	T1/2	Aktivität [kBq]	Bezugs- datum	γ -Linie [keV]	Intensität [%]
^{22}Na	2,6 a	326	01.01.95	511,00	181,0
				1274,00	89,95
^{57}Co	271,8 d	344	01.09.90	122,06	85,59
				136,47	10,58
^{60}Co	5,3 a	12,0	01.01.89	1173,24	99,90
				1332,50	100,0
^{133}Ba	10,7a	3,2	01.01.83	81,00	34,0
				276,40	7,5
				302,85	19,6
				356,01	67,0
				383,85	9,4
^{137}Cs	30,0 a	4,2	01.01.83	661,66	85,0
^{152}Eu	13,5 a	13,8	01.01.94	121,78	28,37
				244,69	7,51
				344,27	26,58
				778,89	12,96
				964,12	14,62
				1085,78	10,16
				1112,02	13,56
^{226}Ra	1600 a	9,8	01.05.94	1407,95	20,85
				241,98	7,12
				295,21	18,15
				351,92	35,10
				609,31	44,60
				1120,29	14,70

Im Energiebereich von 200 keV bis 2 MeV findet man eine annähernd lineare Beziehung zwischen $\ln \epsilon$ und $\ln E$ [DEB 88], so daß aus den Meßwerten oberhalb 200 keV eine Regressionsgerade errechnet werden konnte:

$$\ln \epsilon = a_0 - a_1 \cdot \ln(E/E_0) \quad (3.4)$$

Da die Strahlungsintensität eines annähernd punktförmigen Strahlers mit dem Quadrat der Entfernung abnimmt, verlaufen die Ansprechwahrscheinlichkeitsgraphen in der einfach-logarithmischen Darstellung nahezu parallel; die Differenzen der Achsenabschnitte für zwei Entfernungen verhalten sich wie die Quotienten der entsprechenden Probenabstände, so daß die Ansprechwahrscheinlichkeit für einen beliebigen dritten Probenabstand aus zwei experimentellen Kurven errechnet werden kann:

$$a_3 \cdot \ln\left(\frac{\epsilon_{a_3}}{\epsilon_{a_1}}\right) = a_2 \cdot \ln\left(\frac{\epsilon_{a_2}}{\epsilon_{a_1}}\right) \quad (3.5)$$

Mit Ausnahme des durch Elektroneneinfang (EC) zerfallenden Kerns ^{55}Fe und der kurzlebigen Positronenemitter zerfallen alle im Rahmen dieser Arbeit interessanten Nuklide unter Aussendung von γ -Quanten, so daß zu ihrer Bestimmung die γ -Messung ausreichte; die jeweiligen Zerfallsparameter wurden der Literatur [BRW 86] entnommen.

Die Positronenemitter ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O und ^{18}F (Tab. 3.6) wurden durch die Annihilationsstrahlung ($E_\gamma = 511,0 \text{ keV}$) bestimmt. Um die vollständige Vernichtung der hochenergetischen Positronen zu gewährleisten, wurden die bestrahlten Proben während der Messung oben und unten mit Aluminiumblechen (3 cm dick) abgedeckt.

Tab 3.6: Kurzlebige Positronenstrahler, die bei der Wechselwirkung von menschlichem Gewebe mit beschleunigten Protonen entstehen [aus LED 78]

Nuklid	^{11}C	^{13}N	^{15}O	^{18}F
$t_{1/2} [\text{min}]$	20,03	9,96	2,03	109,7
max. β^+ -Energie [MeV]	0,96	1,19	1,72	0,64
$I_{\beta^+} [\%]$	99	100	99	96,9

3.3 Röntgenspektrometrie

3.3.1 Einleitung und Spektrometriesystem

Radionuklide, die über Elektroneneinfang (EC) zerfallen, lassen sich über die Emission charakteristischer Röntgenstrahlung des Tochteratoms bestimmen [MUS 88]. Die durch den Einfang eines kernnahen Elektrons entstehenden Vakanzen in der Elektronenhülle des Tochteratoms werden durch weiter entfernte Elektronen aufgefüllt; die dem Elektronenübergang entsprechende Differenz der potentiellen Energie kann dabei als Röntgenquant emittiert werden

Am häufigsten werden K-Elektronen eingefangen; man spricht daher auch vom K-Einfang (KE). Quantenmechanisch kommt dem Atomhüllenelektron eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit $w(r) = |\Psi(r)|^2$ auch in Kernnähe zu; diese ist für die K-Schale am größten (Emission von K-Strahlung). Je nach Quantenzustand des auffüllenden Elektrons spricht man von $K_{\alpha 1,2}$, $K_{\beta 1,2}$ -Strahlung usw. Ein Elektroneneinfang kann immer dann stattfinden, wenn die Zerfallsenergie des Mutterkerns größer ist als die Bindungsenergie des einzufangenden Elektrons. Neben der Emission von Röntgenquanten ist beim Auffüllen von Vakanzen die Aussendung von Auger-Elektronen möglich. Die Wahrscheinlichkeit ω_K , mit der ein Röntgenquant emittiert wird, heißt Fluoreszenzausbeute:

$$\omega_K = \frac{N(X_K)}{N_0} \quad (3.6)$$

$N(X_K)$ ist die Anzahl emittierter Röntgenquanten, N_0 die Anzahl Vakanzen in der K-Schale. Im Gegensatz zur γ -Spektrometrie verwendet man bei der hochauflösenden Röntgenspektrometrie fast ausschließlich Si(Li)-Halbleiterdetektoren; daneben finden Proportionalzähler Verwendung. Obwohl die Ansprechwahrscheinlichkeit viel geringer ist als die von Ge(Li)- oder HPGe-Detektoren, sind sie aufgrund ihrer besseren Auflösung für die Röntgendetektion besser geeignet als diese [HER 86].

Bei der Reaktion von hochenergetischen Protonen mit Fe- oder Cu-Kernen entstehen einige längerlebige Radionuklide, die durch Elektroneneinfang zerfallen (Tab 3.7) Für die Röntgenspektrometrie im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Si(Li)-Halbleiterdetektor mit einem aktiven Durchmesser von 4 mm, einer Tiefe von 4,59 mm und einer 0,0127 mm dicken Absorptionsschicht aus Be verwendet, der -wie auch das γ -Spektrometriesystem- unter GAMMAVISION (EG & G ORTEC) bedient wurde. Die Kanalbreite dieses Systems betrug 0,045 keV, was nicht zur Unterscheidung zweier nahe benachbarter K_α -linien (insbesondere bei ^{55}Fe) ausreichte.

Tab.3.7: Längerlebige Nuklide aus Fe(p,x)- und Cu(p,x)-Prozessen, die durch Elektroneneinfang (e, EC) zerfallen [BRW 86]

Nuklid	T _{1/2}	Röntgenlinie	Energie [keV]	Intensität [%]
⁴⁹ V	330 d	Ti K _{α1}	4,511	11,4
		Ti K _{α2}	4,505	5,7
		Ti K _{β1}	4,932	1,91
⁵¹ Cr	27,70 d	V K _{α1}	4,952	12,9
		V K _{α2}	4,945	6,5
		V K _{β1}	5,427	2,21
⁵⁴ Mn	312,20 d	Cr K _{α1}	5,415	14,6
		Cr K _{α2}	5,405	7,4
		Cr K _{β1}	5,947	2,47
⁵⁵ Fe	2,70 a	Mn K _{α1}	5,888	8,2
		Mn K _{α2}	5,899	16,2
		Mn K _{β1}	6,490	2,86
⁵⁷ Co	271,77 d	Fe K _{α1}	6,404	15,3
⁵⁸ Co	70,90 d	Fe K _{α2}	6,391	7,7
		Fe K _{β1}	7,058	2,75
⁶⁵ Zn	244,10 d	Cu K _{α1}	8,048	22,6
		Cu K _{α2}	8,028	11,6
		Cu K _{β1}	8,905	4,08

Die der γ -Spektrometrie (Kap 3.2) entsprechenden Bestimmung der Detektor-Ansprechwahrscheinlichkeit (Abb. 3.2) und die Eichung der Energieskala geschah mit Hilfe eines Multielement-Röntgenfluoreszenz- sowie eines ^{55}Fe -Standards für einen festen Abstand. In Abb 3.3 ist das Röntgenspektrum eines ^{55}Fe -Standardpräparates dargestellt; aufgrund der relativ schlechten Auflösung des für die γ -Spektrometrie entwickelten Vielkanalanalysators sind die beiden K_{α} -Linien 5,888 keV und 5,899 keV nicht mehr zu trennen.

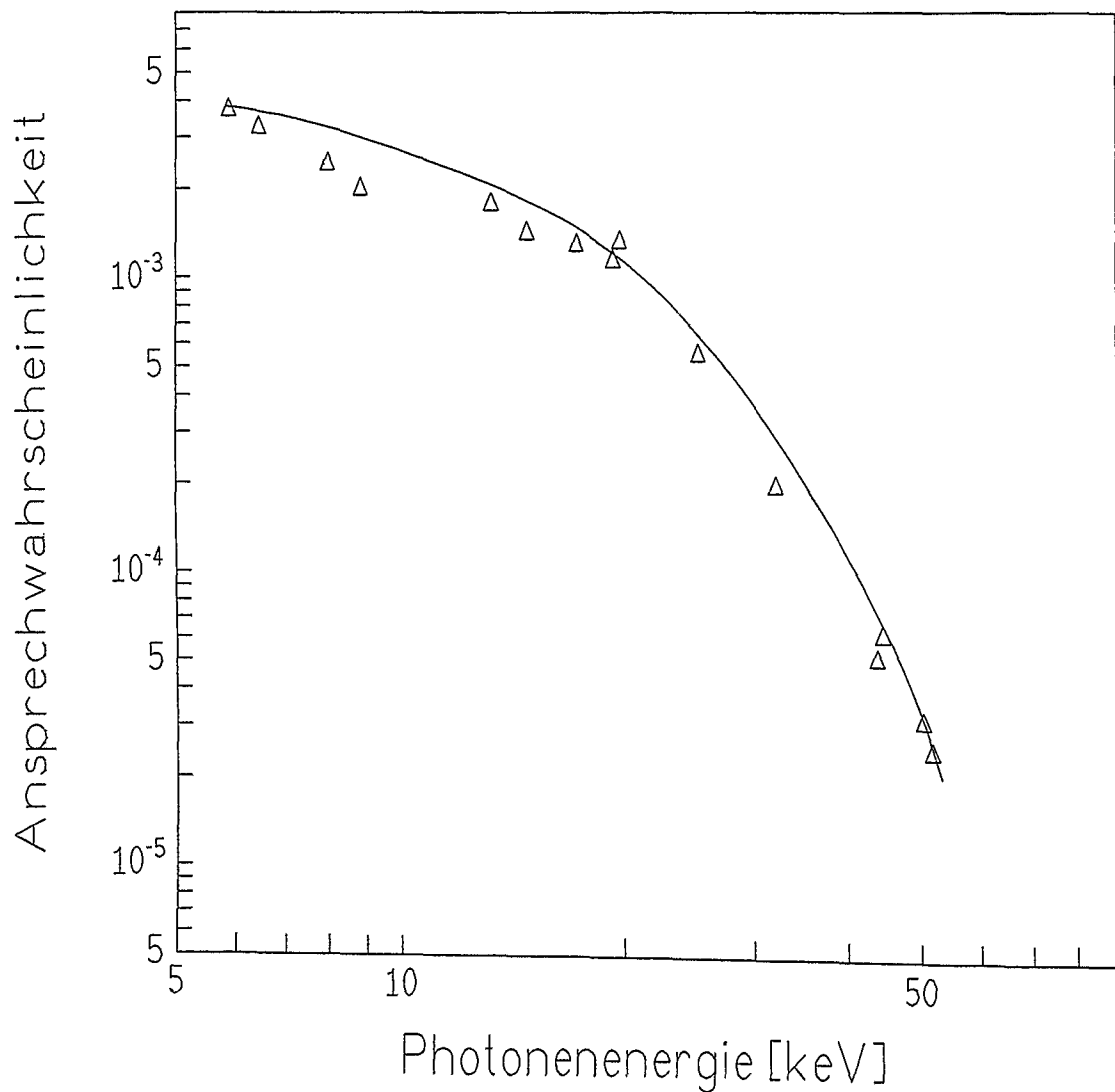


Abb 3.2: Ansprechwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Röntgenenergie für einen Si(Li)-Detektor

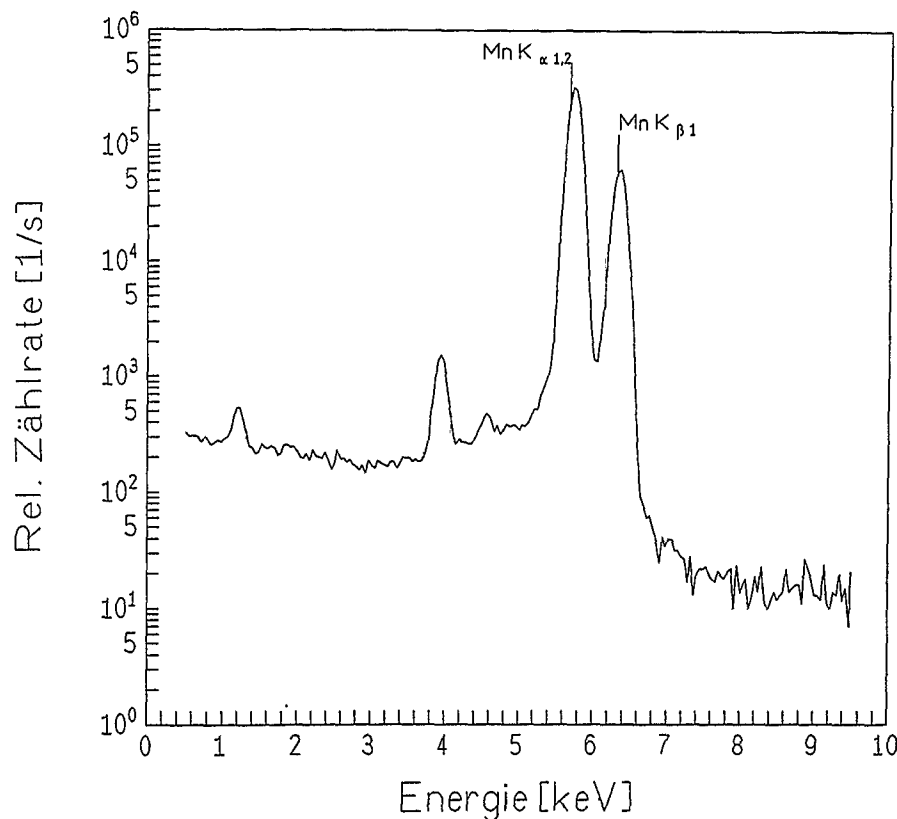


Abb 3.3: Röntgenspektrum eines ^{55}Fe -Standardpräparates

3.3.2 Röntgenabsorption in dicken Targetfolien

Anders als bei der γ -Spektrometrie läßt sich die Strahlungsabsorption in einem realen Körper mit geringer räumlicher Ausdehnung nicht vernachlässigen; die Zählrate muß dementsprechend korrigiert werden. Häufig bestimmt man die Absorption mit Hilfe von Eichstrahlern, die in einer mit der Probe identischen Geometrie gemessen werden. In anderen Fällen stellt man auf chemischem Wege mit der Probenaktivität extrem dünne Präparate her, die eine Vernachlässigung der Strahlenabsorption erlauben.

In dieser Arbeit wurde die Röntgenstrahlungsabsorption für die ^{55}Fe -Bestimmung aus bestrahlten Kupferfolien auf einer einfachen Betrachtung basierend berechnet, die eine Korrektur der Zählrate auf die Folienabsorption hin ermöglichte. Nimmt man für die Verringerung der Zählrate Z beim Eintritt der Tiefe x der Strahlung in Materie einen exponentiellen Verlauf an,

$$Z = Z_0 \cdot e^{-\frac{x}{D_{1/2}} \cdot \ln 2}, \quad (3.7)$$

bestimmt durch die materialabhängige Halbwertsdicke $D_{1/2}$, so ergibt sich für den Zählbeitrag dZ einer am Ort x befindlichen Teilaktivität eines Körpers der Länge l , der längs der x -Achse durch einen näherungsweise profillosen (in y - und z -Richtung ausdehnungslosen) Teilchenstrahl auf die Gesamtaktivität A aktiviert wurde, folgende einfache Differentialgleichung:

$$dZ = dx \cdot \frac{A}{l} \cdot e^{-\frac{x}{D_{1/2}} \cdot \ln 2} \quad (3.8)$$

Durch Integration über die Gesamtlänge l des Körpers

$$Z = \frac{A}{l} \cdot \int_0^l e^{-\frac{x}{D_{1/2}} \cdot \ln 2} dx$$

erhält man für den Quotienten aus Zählrate Z am Detektor und der tatsächlichen Aktivität A :

$$\frac{Z}{A} = \frac{D_{1/2}}{l \cdot \ln 2} \cdot (1 - e^{-\frac{l \cdot \ln 2}{D_{1/2}}}) \quad (3.9)$$

Der Korrekturfaktor ist demnach von der Halbwertsdicke eines bestimmten Materials für eine bestimmte Photonenenergie abhängig. Für die ^{55}Fe -Bestimmung wurden daher die Halbwertsdicken für die beiden Röntgenlinien 5,90 keV und 6,49 keV durch Messung der jeweiligen Zählraten eines auf einem Cu-Folienstapel verschiedener Dicke liegenden ^{55}Fe -Standardstrahlers bestimmt und aufgetragen (Abb 3.4).

Eine Überprüfung der hier vorgestellten Methode der zerstörungsfreien röntgenspektrometrischen Untersuchung von EC-Nukliden war über ^{65}Zn , das im unzerstörten Target sowohl röntgen- als auch γ -spektrometrisch (1115 keV-Linie) bestimmt werden konnte, möglich; nach beiden Methoden wurden vergleichbare absolute Aktivitäten erhalten.

Auch die Bestimmung von chemisch (durch Sulfidfällung und anschließende Feinreinigung über Kationenaustauscher DOWEX 50x8, H^+ -Form) abgetrenntem, geträgertem ^{54}Mn lieferte übereinstimmende Ergebnisse.

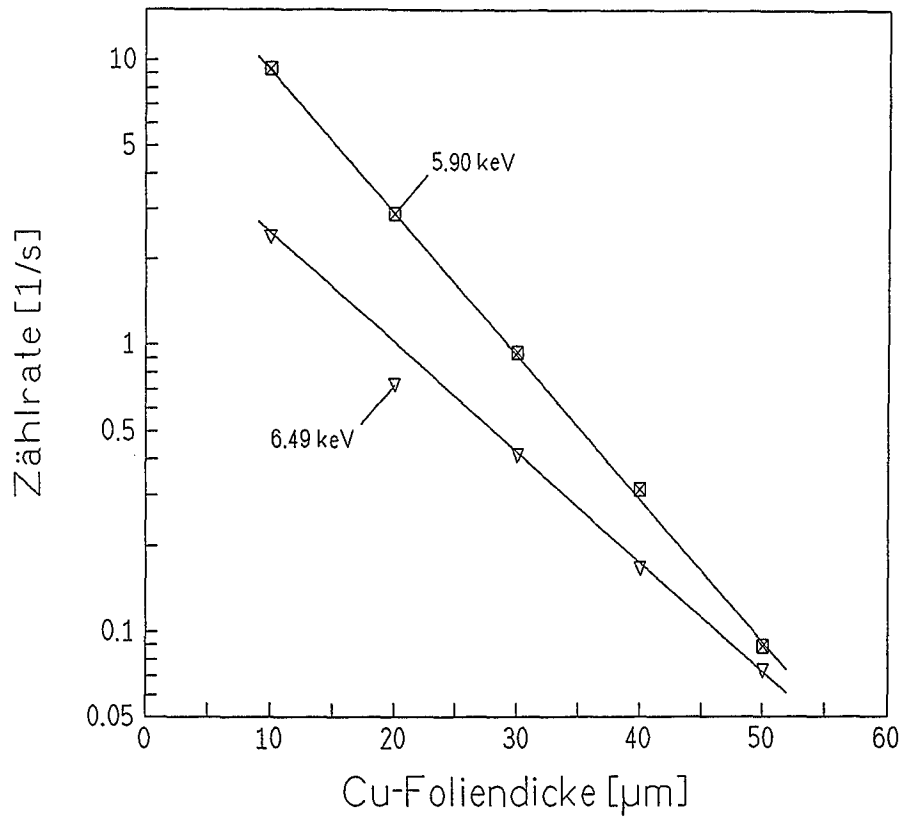


Abb 3.4: Abhängigkeit der Zählrate von der Dicke der absorbierenden Cu-Folie

Aus dem Achsenabschnitt Z_0 und einem beliebigen Punkt (x_1, Z_1) der Regressionsgeraden errechnete sich die jeweilige Halbwertsdicke (Tab. 3.8):

$$D_{1/2} = \ln 2 \cdot x_1 \cdot \left(\ln \frac{Z_0}{Z_1} \right)^{-1} \quad (3.10)$$

Tab 3.8: Experimentelle Halbwertsdicken

Röntgenlinie	Mn- $K_{\alpha 1,2}$	Mn- $K_{\beta 1}$
E/keV	5,90	6,49
$D_{1/2}$	$5,93 \pm 0,33$	$7,84 \pm 1,43$

Ist die Foliendicke sehr viel größer als die Halbwertsdicke, dann gilt für die tatsächliche Zählrate in erster Näherung:

$$A = \ln 2 \cdot Z \cdot \frac{L}{D_{1/2}} \quad (3.11)$$

Interferenzen durch die $\text{CrK}_{\beta 1}$ -Linie nach ^{54}Mn -Zerfall konnten durch γ -spektrometrische Ermittlung der ^{54}Mn -Aktivität korrigiert werden.

3.4 Bestimmung des Protonenflusses

Der Protonenfluß innerhalb eines Folienstapels wurde bei TSL- und LNS- Bestrahlungen mit Hilfe der Monitorkernreaktionen $^{\text{nat}}\text{Al}(p,x) \text{ } ^{22,24}\text{Na}$ und $^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x) \text{ } ^{62,65}\text{Zn}$, bei Experimenten am COSY zur Bestimmung kurzlebiger Produkte durch die Reaktion $^{\text{nat}}\text{C}(p,pxn) \text{ } ^{11}\text{C}$ bestimmt. Aus der absoluten Aktivität **A** der Monitornuklide (Tab. 3.9), den Kernreaktionswirkungsquerschnitten σ , der Teilchenzahlflächendichte **N** für die jeweiligen Bildungsreaktionen erhielt man durch Umformung von Gl. 1.5 den Protonenfluß ϕ :

$$\phi = \frac{A}{\sigma \cdot N \cdot \left(1 - e^{-\ln 2 \cdot \frac{t - t_{\text{EOB}}}{t_{1/2}}}\right)} \quad (3.12)$$

Hierbei ist $t_{1/2}$ die Halbwertszeit des Monitornuklids, $(t - t_{\text{EOB}})$ die vom Bestrahlungsende bis zum Meßzeitpunkt verstrichene Zeit.

Tab. 3.9: Kernphysikalische Daten der Monitornuklide [aus LED 78]

Nuklid	^{22}Na	^{24}Na	^{62}Zn	^{65}Zn	^{11}C
Hauptzerfallsart	β^+	β^+	e	e	β^+
$t_{1/2}$	2,60 a	14,96 h	9,26 h	244,1 d	20,4 min
γ -Energie [keV]	1274,5	1368,6	596,7 548,4	1115,5	511
γ -Intensität [%]	99,937	100	25,7 15,2	50,75	200

In den Abb. 3.5 und 3.6 sind die Anregungsfunktionen der Reaktionen $^{27}\text{Al}(p,x)^{22}\text{Na}$ und ^{24}Na dargestellt. Für den Protonenenergiebereich 80-200 MeV wurden ausschließlich neuere Daten (^{22}Na : [STE 90], ^{24}Na : [MIC 85], $^{62,65}\text{Zn}$ [MIL 92]) herangezogen, die entsprechend linear interpoliert wurden. Da der Bereich 200-400 MeV weniger gut untersucht war, wurden für die Flußbestimmung bei Bestrahlungen am LNS die evaluierten Wirkungsquerschnitte nach Tobaillem [TOB 81] verwendet.

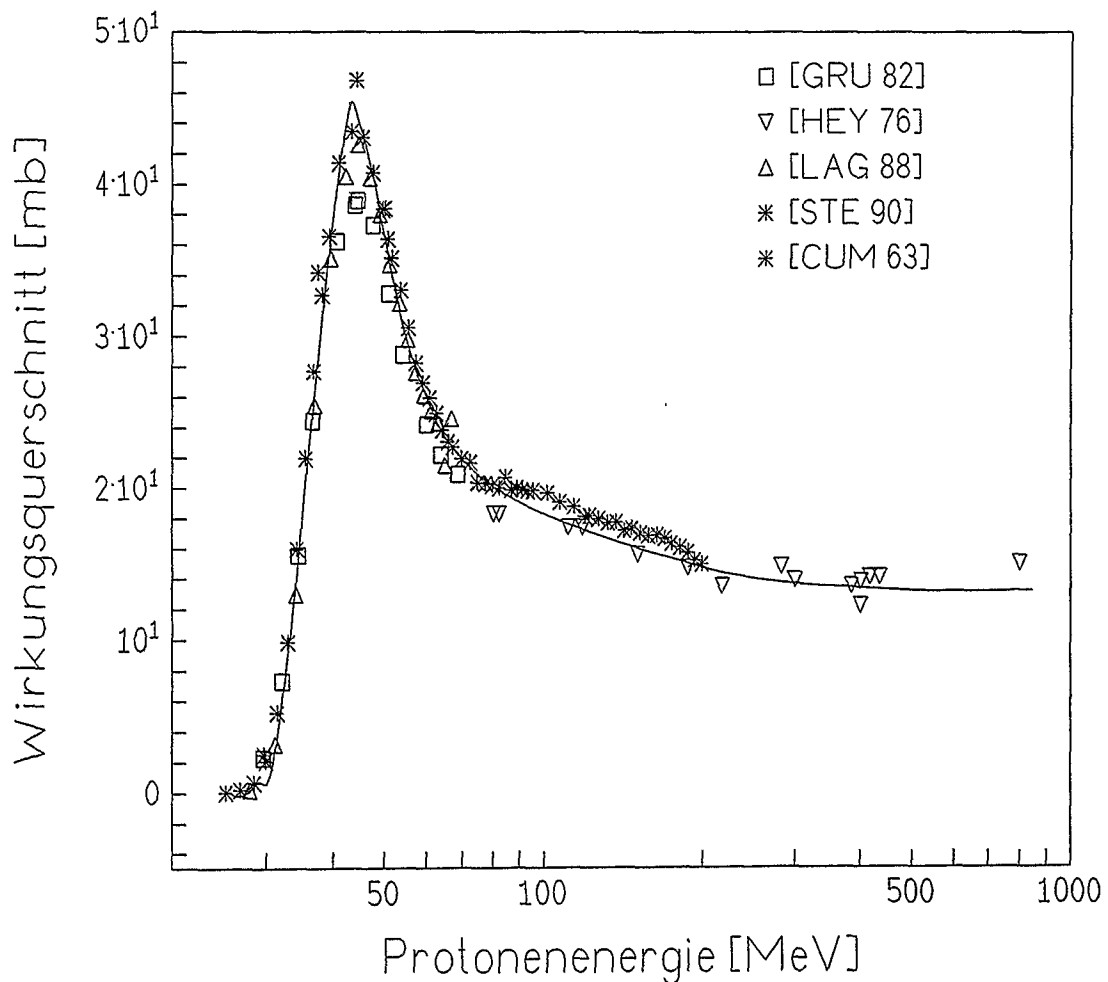


Abb. 3.5: Anregungsfunktion für die Monitorreaktion $^{27}\text{Al}(p,x)^{22}\text{Na}$

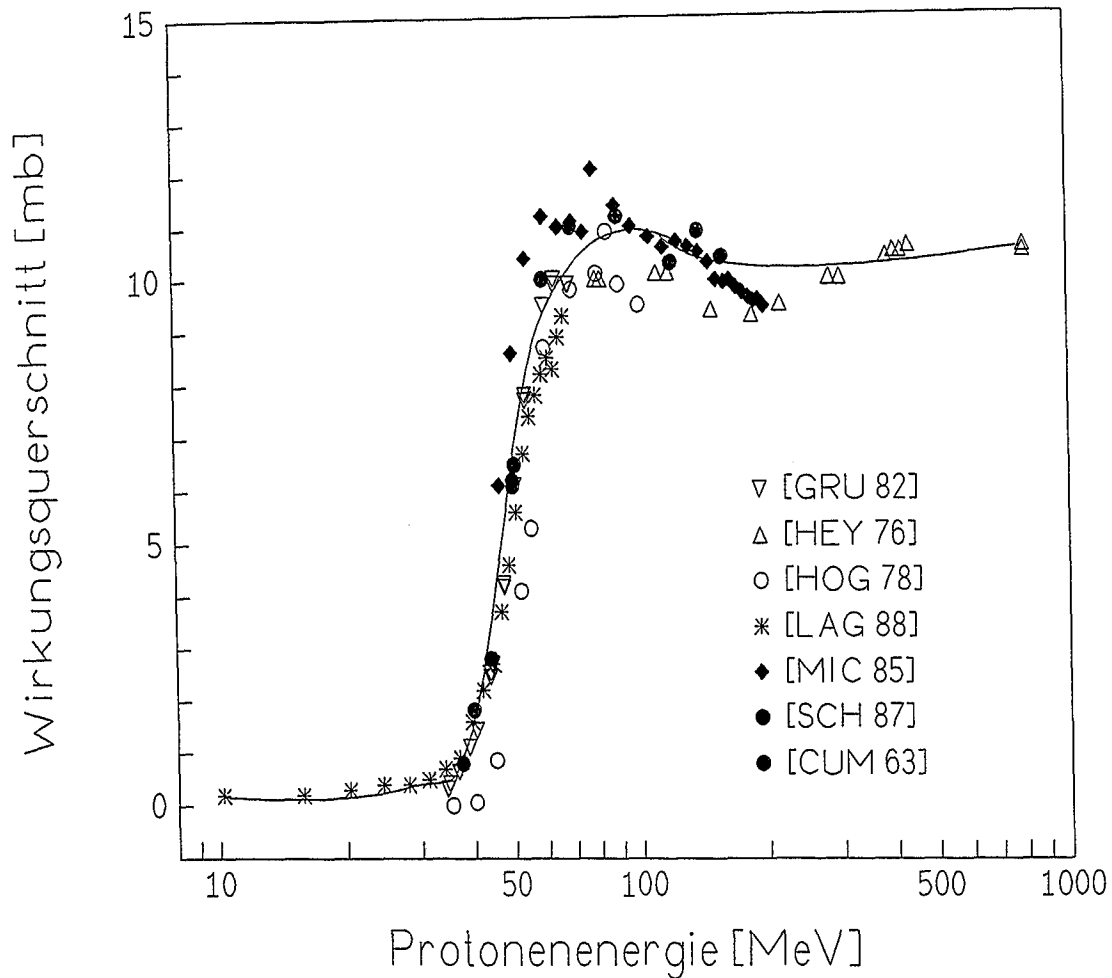


Abb. 3.6: Anregungsfunktion für die Monitorreaktion $^{27}\text{Al}(p,x)^{24}\text{Na}$

Abb 3.7 zeigt exemplarisch die Abhängigkeit des Protonenflusses von der Strahlenenergie bei dem Bestrahlungsexperiment Upps-11. Der Teilchenfluß verlief nahezu konstant. Ferner waren die Flußwerte beider Al-Monitorreaktionen konsistent, so daß der Einfluß von Sekundär-Neutronenfeldern offenbar vernachlässigbar gering war. Sekundär gebildete Verdampfungsneutronen induzieren die Reaktion $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ und liefern durch zusätzlich gebildete ^{24}Na -Aktivität erhöhte Flußwerte, während die ^{22}Na -Aktivität von Sekundärteilchenströmen unabhängig ist.

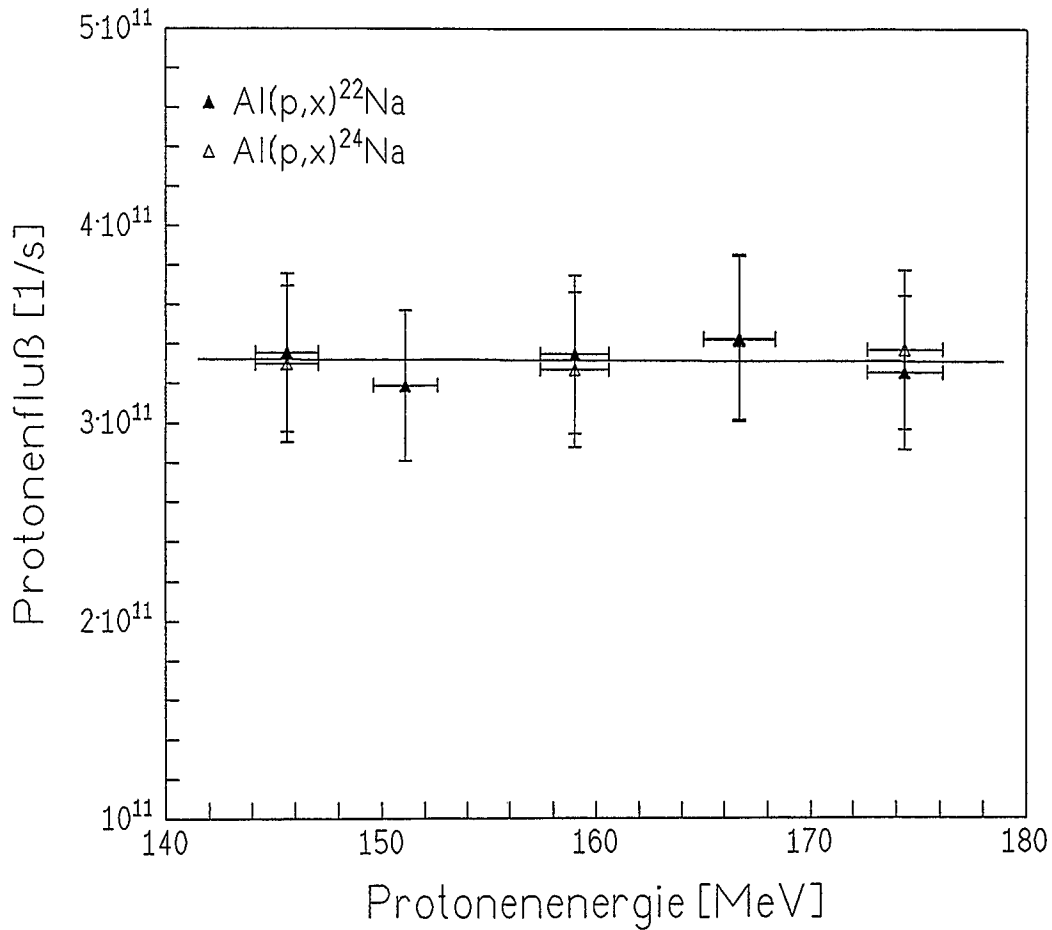


Abb 3.7: Verlauf des Protonenflusses innerhalb des Stacks 'Upps11'

Auch bei den LNS-Bestrahlungen traten zwischen den am Anfang und am Ende platzierten Monitorfolien keine Flußdiskrepanzen auf; der Aufbau von Sekundärteilchenfeldern wurde durch eine geringe Massenbelegung von 1,8 bis 2,0 g cm⁻² eingeschränkt. Nach Lüpke [LÜP 93] nimmt die berechnete Flußdichte eines primären Protonenstrahls von 800 MeV Energie beim Durchlaufen der Massenbelegung 9,35 g cm⁻² von (normiert) 1,0 cm⁻² s⁻¹ auf 0,86 cm⁻² s⁻¹ ab. Bei einer Massenbelegung von 2 g cm⁻² nimmt die Flußdichte nur auf etwa 0,97 cm⁻² s⁻¹ (800 MeV) ab, so daß bei 400 MeV Energie bereits eine vernachlässigbare Schwächung des primären Flusses zu erwarten ist. Die Flußdichte sekundärer Protonen beträgt gemäß den Monte-Carlo-Rechnungen von Lüpke bei einer Energie von 800 MeV etwa 13 % der primären Flußdichte für die Massenbelegung 9,35 g cm⁻² und ca. 5 % für 2 g cm⁻²; bei 400 MeV wäre ein sehr viel kleinerer Wert zu erwarten.

3.5 Bestimmung von Kernreaktionsdaten

3.5.1 Absolute Aktivität

Die Auswertung der γ - und Röntgenspektren lieferte eine Peakfläche **F**; Division durch die tatsächliche Meßzeit **T** ergab die relative Detektorzählrate **Z**. Ist die Meßdauer klein gegenüber der Halbwertszeit des gemessenen Nuklids, so erhält man die absolute Aktivität **A_{abs}** in Umkehrung der Gleichung 3.3 unter Berücksichtigung der Detektoransprechwahrscheinlichkeit **e** und der Häufigkeit **i** der untersuchten Strahlungslinie:

$$A_{\text{abs}} = \frac{Z}{e \cdot i} \quad (3.13)$$

Ist der Aktivitätsabfall während der Meßzeit Δt nicht mehr zu vernachlässigen, dann muß die Peakfläche entsprechend korrigiert werden; die Aktivität ist dann gegeben durch:

$$A_{\text{kor}} = F \cdot \frac{\lambda}{1 - e^{-\lambda \cdot \Delta t}} \quad (3.14)$$

Die Aktivität bei Bestrahlungsende **A_{EOB}**, nach Ablauf der Zeit **t_{EOB}**, ist dann

$$A_{\text{EOB}} = \frac{A_{\text{kor}}}{e \cdot i} \cdot e^{-\lambda t_{\text{EOB}}} \quad (3.15)$$

Die Bestimmung der absoluten Aktivität kurzlebiger Positronenstrahler erfolgte durch Extrapolation der Regressionsgeraden aus den jeweiligen Zerfallskurven. Die Zerfallskurve wurde unmittelbar nach der Bestrahlung durch eine Vielzahl kurzer γ -Zählungen des Annihilationspeaks bestimmt; sie nähert sich bei doppelt logarithmischer Auftragung asymptotisch der Zerfallsgeraden des langlebigen Isotops. Die Extrapolation der Regressionsgeraden des Kurvenausläufers für $t \rightarrow \infty$ auf $t = t_{\text{EOB}}$ lieferte sofort die Anfangsaktivität des Nuklids; die Subtraktion der Zerfallsgeraden liefert eine reduzierte Zerfallskurve, aus der wiederum die Aktivität des langlebigen Nuklids extrapoliert werden konnte, so daß man durch sukzessive Extrapolation und anschließende Subtraktion die Einzelaktivitäten der Nuklide erhielt. Abb 3.8 zeigt den Verlauf der 511-keV- γ -Aktivität eines mit 175 MeV-Protonen bestrahlten SiO_2 -Targets.

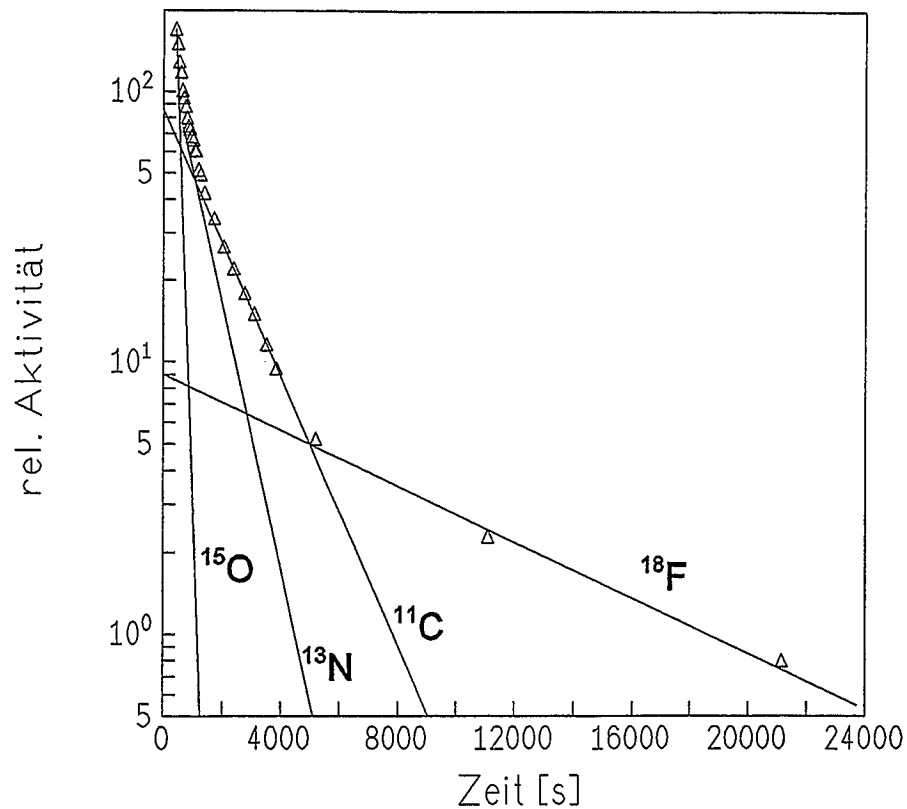


Abb. 3.8: Verlauf der 511-keV- γ -Aktivität einer mit hochenergetischen Protonen bestrahlten SiO_2 -Probe. Die Zerfallskurve besteht aus den überlagerten Aktivitäten der Nuklide ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O und ^{18}F

3.5.2 Wirkungsquerschnitt

Aus der absoluten Aktivität des Nuklids bei Bestrahlungsende A_{EOB} (3.5.1), dem Teilchenfluß ϕ und der Teilchenzahlflächendichte N erhielt man (ohne Berücksichtigung der Isotopenhäufigkeit) durch Auflösen der Aktivierungsgleichung (1.4) den Wirkungsquerschnitt σ für die betrachtete Kernreaktion:

$$\sigma = \frac{A_{\text{EOB}}}{\phi \cdot N \cdot \left(1 - e^{-\ln 2 \cdot \frac{t_{\text{irr}}}{t_{1/2}}}\right)} \quad (3.16)$$

Der Fehler für den Wirkungsquerschnitt war die Wurzel der Quadratsumme aus allen vorkommenden relativen Fehlern Δu_i : Wägefehler, Flußfehler, Toleranz der Häufigkeit der γ -Linie, Integrationsfehler bei der Peakauswertung, Genauigkeit der γ -Zählrate (Tab. 3.10). Zusätzlich wurde noch die Standardabweichung Δf bei Wiederholungsmessungen der absoluten

Aktivität berücksichtigt.

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \left(\sum \left(\frac{\Delta u_i}{u_i} \right)^2 + \left(\frac{\Delta f}{f} \right)^2 \right)^{1/2} \quad (3.17)$$

Tab. 3.10: Fehlerquellen bei der Bestimmung von Wirkungsquerschnitten

Fehlerquelle	Fehler [%]
zufällig	
Bestrahlungsdauer	0,1
Folienmasse	0,1
Peakflächenanalyse	5
Zählstatistik	2-60
korreliert	
Monitor-Anregungsfunktion	12-15
Detektoreffizienz	7
Zerfallsdaten	0,5
Quadratsumme	9-60

War die Bildung eines Aktivierungsproduktes durch mehrere Komponenten einer Verbindung $A_mB_mC_n$ oder eines Gemenges möglich, dann erhielt man zunächst einen Summenwirkungsquerschnitt σ_{tot} , aus dem sich der unbekannte Wert durch Subtraktion der bereits bekannten Komponenten für die gegebene Energie errechnen ließ:

$$\sigma(A) = \frac{\sigma_{\text{tot}} - m \cdot \sigma(B) - n \cdot \sigma(C)}{1} \quad (3.18)$$

Entsprechend mußte die Fehlerfortpflanzung berücksichtigt werden, so daß sich hier Fehler bis ca. 70% ergaben.

3.6 Chemische Trennungen

3.6.1 Trennproblem, Geräteaufbau und Eluentenwahl

Trennproblem

Das dieser Arbeit zugrundeliegende Trennproblem bestand in einer möglichst effektiven, wenig aufwendigen Abtrennung von Beryllium und Natrium von zahlreichen Übergangsmetallkationen aus bestrahlten Metallfolien oder -verbindungen; die zu bestimmenden ^7Be , $^{22,24}\text{Na}$ -Aktivitäten waren durch längerlebige Aktivierungsprodukte überlagert und entzogen sich daher einer einfachen zerstörungsfreien γ -spektrometrischen Messung. Bei Verwendung einer analytischen Trennsäule wurden Trägermengen im μg -Bereich zugegeben und die eluierenden Ionen mit Hilfe der Leitfähigkeitsänderung detektiert. Das Beryllium wurde nach anschließender Zugabe einer gut wägbaren Menge Berylliumträger isoliert und als geglühtes Berylliumoxid (BeO) ausgewogen; zur Abtrennung der Natriumisotope wurde mit NaCl geträgert und dieses nach der Trennung als getrocknetes NaCl rückgewogen. Die Ermittlung der Trennausbeute geschah mit Hilfe einer Detektor-Eichkurve (Peakfläche $\rightarrow$ Berylliumgehalt) nach Integration der Beryllium-Detektionspeaks. Beim semipräparativen Trennansatz konnte unmittelbar eine wägbare Menge Träger eingesetzt und nach der Trennung ausgewogen werden, so daß eine quantitative Be-Detektion nicht erforderlich war.

Geräteaufbau

Die für diese Arbeit erforderlichen HPLC-Methoden wurden mit Hilfe der in Abb. 3.9 skizzierten Apparatur entwickelt. Das komplette Solvent-Zuführungssystem (PEEK-Ausführung) und die Ionenaustauscher-Trennsäulen (analytisch: 4,6 mm Durchmesser, 150 mm Länge; semipräparativ: 7,5 mm Durchmesser, 250 mm Länge) wurden von der SYKAM GmbH bezogen. Die Säulen waren bereits fertig mit dem speziellen Kationenaustauscherharz 'SYKAM KO2' (Polystyrol-modifiziertes Silikagel, $-\text{SO}_3\text{H}$ -Gruppe, 5 μ Körnung, Arbeitsmilieu: pH 2-7) gefüllt. Um die PEEK-Säulen vor Verunreinigungen zu schützen und um bessere Trennergebnisse zu erhalten, wurde der eigentlichen Trennsäule eine kleinere Säule (50 mm Länge), die den identischen Austauscher enthielt, vorgeschaltet ('Vorsäulenkartusche' nach SYKAM-Applikation). Die Trennsäulen waren bei Lieferung mit n-Hexan konditioniert und mußten vor den Experimenten 10 min bei 2,0 ml/min Fluß mit Tetrahydrofuran zwischenkonditioniert werden; nach anschließendem 10-minütigem Spülen mit Wasser (MERCK; p.a. Qualität) waren sie betriebsbereit. Die spezielle Polymerbeschichtung erhöhte die Lagerfähigkeit des Austauscherharzes in Reinstwasser beträchtlich, so daß eine Umkonditionierung (Eluent $\rightarrow$ Wasser $\rightarrow$ THF $\rightarrow$ n-Hexan) nicht

unmittelbar nach jedem Experiment erforderlich war. Bei kurzfristiger Betriebspause (etwa über Nacht) wurde die Säule unter der Eluentenlösung stehengelassen; zur Vorbeugung von evtl. Auskristallisation oder Schimmelpilzwachstum wurde ein ständiger Eluentenfluß von 0,10 ml/min beibehalten.

Häufig wird eine UV/VIS-Detektion der eluierenden Ionen angewandt. Da die Metallkationen hierfür keine sehr große Empfindlichkeit zeigen, ist es notwendig, eine spezifische Nachsäulereaktion durchzuführen. Eine solche Nachsäulenderivatisierung war für die in dieser Arbeit gelegte Zielsetzung untauglich, da die eluierenden Be-Ionen wiedergewonnen und anschließend γ -spektrometrisch bestimmt werden sollten, was durch die Anwesenheit von störendem Derivatisierungsreagenz zusätzlich erschwert worden wäre. Es kam daher nur eine Detektion durch die elektrische Leitfähigkeit in Frage.

Eine konstante Basislinie erhielt man aufgrund der starken Fluß- und Temperaturempfindlichkeit der gemessenen Leitfähigkeit erst nach 30-minütigem Vorlaufbetrieb mit dem entsprechenden Eluenten; nach Angaben des Herstellers sollte die Grundleitfähigkeit 400 μS nicht überschreiten (Meßbereich am SYKAM S20-Gerät: 1000 μS Vollauschlag). Verließ die Leitfähigkeit zeitlich konstant, konnte die Auto-Zero-Funktion aufgerufen werden, die die Basislinie automatisch auf den Nullpunkt legte. In den meisten Fällen schwankte die Leitfähigkeit nach der Nulllinienkorrektur erneut einige Minuten; bei Konstanz konnte in den Detektionsmeßbereich (30 μS Vollauschlag, Empfindlichkeit: 0,05 μS) umgeschaltet werden. Da die Eluentleitfähigkeit bei der Kationen-Elution abnimmt, wurde die Chromatographie-Aufzeichnung im REVERSE-Modus durchgeführt, so daß eine positive Änderung (Peakhöhe) registriert wurde. Die Zellkonstante der Leitfähigkeitsmeßzelle wurde mit $(k = 0.40 \pm 0.02) \text{ cm}^{-1}$ angegeben. Daraus erhielt man die spezifische Leitfähigkeit Λ einer Lösung sofort durch Multiplikation mit dem Wert (in μS) der angezeigten Leitfähigkeit L :

$$\Lambda = k L \quad (3.19)$$

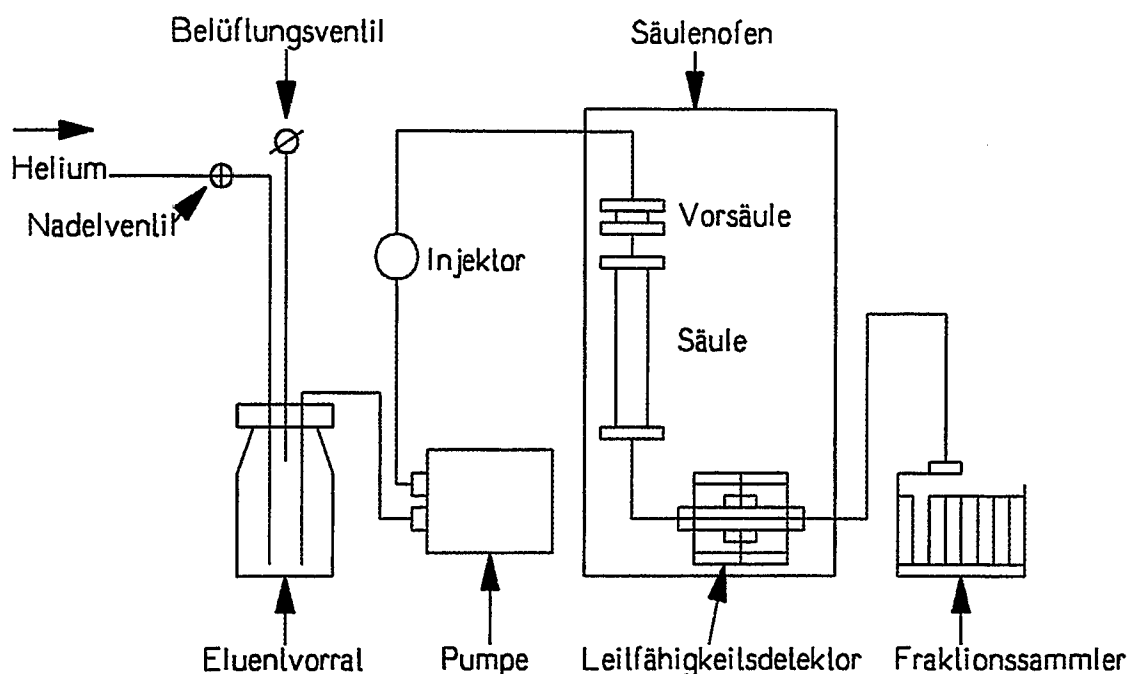


Abb 3.9: Schema der verwendeten SYKAM-PEEK Apparatur zur Kationen-HPLC

Die Eluent-Lösung wurde in einer UV-geschützten 2l-Flasche mit 3-Wege-Ventil bereitgestellt. Um gelöste Gase weitestgehend zu entfernen, wurde der Eluent 15 min lang mit Reinst-Helium gespült; das Eindringen grober Partikel in die Säule wurde durch TEFLON-Porenfilter an den Enden der Zuführungsschläuche verhindert. Eine elektronisch gesteuerte Hochdruck-Pumpe lieferte einen konstanten Eluent-Fluß; ein 6-Port-3-Kanal-Injektorventil erlaubte eine fast totvolumenfreie Probeninjektion. Die PEEK-Probenschleife hatte ein Fassungsvermögen von 150 µl. Zur konduktometrischen Detektion diente der SYKAM S20- Leitfähigkeitsdetektor, der über eine Steckkarte mit einem IBM-kompatiblen PC verbunden war und über ein mitgeliefertes Analyse-Programm gesteuert wurde. Mit Hilfe dieses Detektorsystems war eine Kompensation der Eluent-Eigenleitfähigkeit und eine Stabilisation der Basislinie durch einen thermostatischen Säulenofen mit Temperaturvorgabe möglich (Auto-Zero-Funktion); die eluierende Lösung wurde mit einem REDIFRAC-Fraktionssammler aufgefangen und anschließend Ge(Li)-γ-spektrometrisch (Kap. 3.2) untersucht.

Eluentenwahl

Verwendete Chemikalien:

Salpetersäure	(MERCK p.a.-Qualität)
Metallionen-Standardlösungen	(Sc, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Be),
Citronensäure-1-hydrat	(MERCK p.a.-Qualität)
Wasser	(MERCK Wasser zur Chromatographie oder p.a.-Qualität)
Pyridin-2,6-dicarbonsäure (Dipicolinsäure), Ethylendiamin	(beide MERCK/Schuchard, zur Synthese)

Zum Trennproblem Be / Übergangsmetalle wurde zunächst ein reiner 10 mM-Weinsäure- sowie ein (10 mM/ 5 mM) Citronensäure/Weinsäure-Eluent erprobt (Eluentenfluß: 2,0 ml/min; Säulentemperatur 40 °C); die Trennung war jedoch unbefriedigend, da Mn^{2+} und Be^{2+} praktisch gleichzeitig eluierten. Es wurde gezeigt [KON 88], daß ein gewisser Gehalt an Pyridin-2,6-dicarbonsäure (Dipicolinsäure) eine starke Verkürzung der Elutionszeiten von Übergangsmetallkationen aufgrund der Bildung stabilerer Komplexe bewirkt, während Erdalkalimetallkationen kaum in ihrem Elutionsverhalten beeinflusst werden.

Unter Verwendung dieser Ergebnisse konnte Be schließlich hinreichend sauber von den Aktivierungsprodukten abgetrennt werden. Zur Herstellung von 2 l Eluentenlösung für die HPLC-Trennung im **analytischen** Maßstab (5 mM Citronensäure/ 1 mM Pyridindicarbonsäure/ 3,5 mM Ethylendiamin) wurden 2100 mg Citronensäure (10 mmol), 334 mg Pyridin-2,6-dicarbonsäure (2 mmol) in 100-200 ml heißem Reinstwasser gelöst und anschließend mit Wasser auf 2,0 l aufgefüllt. Zur Erhöhung des pH wurden 230 µl (3,5 mmol) Ethylendiamin zugefügt [nach REI 88]; eine Erhöhung des pH bewirkt beim Kationenaustausch eine Verkürzung der Retentionszeit [vgl. MEY 92]. Vor der Verwendung wurde die Eluentenlösung 10 min lang mit Reinstheliumgas entgast. Die Grundleitfähigkeit dieser Lösung betrug bei 40°C und 2,0 ml/min Fluß etwa 160 µS cm⁻¹. Nach etwa einstündiger Konditionierung mit Eluentenlösung konnte die zu trennende Lösung auf die Säule gegeben werden.

Für die Trennung im **semipräparativen** Maßstab wurde eine Eluentenlösung von oben beschriebener Zusammensetzung und 10-facher Konzentration (50 mM Citronensäure/ 10 mM Pyridindicarbonsäure/ 35 mM Ethylendiamin) bei einem konstanten Fluß von 10 ml/min und 40°C Säulentemperatur verwendet.

Die Abtrennung von Natrium gelang mit 10 mM-HNO₃ bei einem konstanten Eluentenfluß von 6,0 ml/min und einer Säulentemperatur von 40°C im **semipräparativen** Maßstab.

3.6.2 Ermittlung der Säulenparameter

Zur Beurteilung der Trennqualität wurden mit Hilfe von Tracer-Radioisotopen (siehe Tab. 3.11) die Parameter α (Mn/Be) und N für die in dieser Arbeit verwendete **analytische** Trennsäule bestimmt. Hierzu wurde eine mit hochenergetischen Protonen bestrahlte Kupferfolie wie in 3.6.5 beschrieben aufgearbeitet, mit Beryllium- und Übergangsmetallionenträger sowie zusätzlich mit am Niederenergie-Beschleuniger erzeugten ⁴⁸V, ⁵⁴Mn, ⁵⁷Ni, ⁷Be-Aktivitäten (jeweils ~ 1-3 µCi) versetzt, der HPLC-Trennung unterworfen und die eluierende Lösung in 0,5-ml bzw (nach 20 ml Elutionsvolumen) 2 ml-Fractionen aufgefangen und Ge(Li)-γ-spektrometrisch untersucht.

Tab. 3.11: Für die Ermittlung der Säulen-Trennparameter eingesetzte radioaktive Tracerisotope. Die mit einem Stern (*) gekennzeichneten Nuklide entstanden bei der Bestrahlung von Kupfer mit Hochenergieprotonen; die übrigen wurden am Kompaktzyklotron CV28 der KFA Jülich erzeugt

Tracernuklid	Produktions- methode	Zerfallsart (%)	Zerfallsparameter		
			T _{1/2}	E _γ [keV]	I _γ (%)
⁴⁶ Sc	^{nat} Fe(p,x) *	β ⁻ (100)	83,3 d	889	(99,9)
⁴⁸ V	^{nat} Ti(³ He,x)	EC(50), β ⁺ (50)	16,0 d	1312	(97,5)
⁵¹ Cr	^{nat} Cu(p,x) *	EC(100)	27,7 d	320	(9,8)
⁵⁴ Mn	^{nat} Cr(p,x)	EC(100)	312,2 d	834	(99,9)
⁵⁹ Fe	^{nat} Cu(p,x) *	β ⁻ (100)	44,5 d	1099	(56,5)
⁵⁶ Co	^{nat} Cu(p,x) *	EC(81), β ⁺ (19)	77,7 d	846	(99,9)
⁵⁷ Ni	⁵⁹ Co(³ He,x)	EC(60), β ⁺ (40)	1,5 d	1377	(77,9)
⁶² Zn	^{nat} Cu(p,x) *	EC(93), β ⁺ (7)	9,1 h	597	(24,3)
⁷ Be	⁷ Li(p,n)	EC(100)	53,3 d	478	(10,4)

Wie aus dem Elutionsdiagramm (Abb. 3.10) erkennbar ist, besitzt Mn -da das Cu-Target in konz. HCl gelöst wurde, lag Mn^{2+} vor - die größte Elutionszeit aller betrachteten Aktivierungsprodukte, so daß die Qualität der Be-Trennung offenbar durch die Auflösung α der benachbarten Peaks von Mn und Be bestimmt wurde. Die Mn,Be-Kurvenpeaks wurden als näherungsweise unverzerrt (vgl. Abb. 1.4) angenommen und ausgemessen. Die Auflösung α und die Trennstufenzahl N wurde aus den erhaltenen chromatographischen Größen durch Einsetzen in die Gleichungen (1.6) und (1.8) bestimmt und als Funktion der Be-Säulenbeladungsmenge aufgetragen (Abb. 3.11 und 3.12).

Offenbar verschlechtert sich die Trennqualität mit zunehmender Be-Trägermenge; während die Auflösung beim Übergang zur 5-fachen ($1\mu\text{mol} \rightarrow 5\mu\text{mol}$) Be-Trägermenge von etwa 1,6 auf etwa 1,2 (um 25%) sinkt, nimmt die Anzahl der theoretischen Trennböden hierbei von ca. 200 auf ca. 80 (um 60 %) ab, so daß die zugegebene Trägermenge möglichst niedrig gehalten werden mußte, um gute Trennungen zu erreichen.

Tab 3.12: Elutionszeiten der in dieser Arbeit untersuchten Metalle (analytische Säule: 4,6 mm Durchmesser, 150 mm Länge, Injektionsvolumen: 100 μl ; Temperatur: 40° C; Druck: 20,0 MPa; Fluß: 2,0 ml/min; Eluent: 5 mM Citronensäure/ 1mM Pyridindicarbonsäure/ 3,5 mM Ethylendiamin; Trägermenge: 100 μg Be, 0,5 μg für die anderen Elemente)

Element	Elutionszeit [min]	
	Diese Arbeit	Literatur [vgl.KON 88]
Sc	5,5	
V	2,0	
Cr	1,5	
Mn	5,5	4,5
Fe	1,8 - 2,0	
Co	2,5	< 3
Ni	1,75	
Zn	4,0	3
Be	10 - 12	15

Tab 3.12 zeigt die in dieser Arbeit gefundenen Elutionszeiten für die Peak-Maxima zusammen mit Literaturdaten für das gleiche Eluens und einen ähnlichen Kationenaustauscher (Eluent: 5

mM Citronensäure; 1 mM Pyridindicarbonsäure; Fluß: 1ml/min; Austauscherharz: Nucleosil-5-100-PBDMA (Schomburg, Mühlheim)).

Die in den Diagrammen 3.11 und 3.12 wiedergegebenen systematischen Fehler sind (entsprechend der Gauß-Fortpflanzung) die Wurzeln der Quadratsummen der geschätzten relativen Fehler (Ablesegenauigkeit, Genauigkeit der Leitfähigkeitsmessung) der graphisch ermittelten chromatographischen Einzelgrößen (Δt , t_{ms} , b); sie lagen sowohl für α als auch für die Trennstufenzahl N (Zahl der theoretischen Böden) in der Größenordnung 10-12 %.

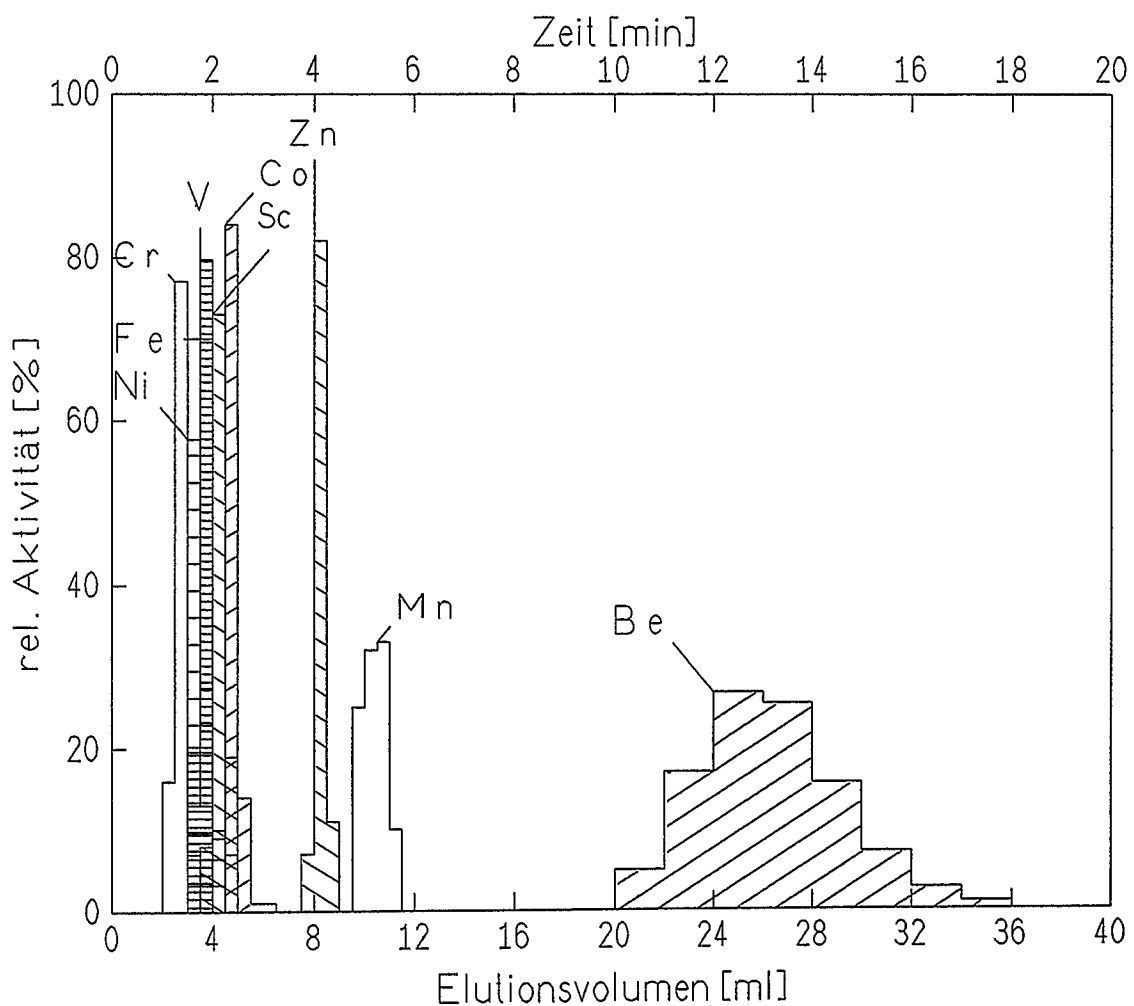


Abb 3.10: γ -spektrometrisch ermitteltes Elutionsdiagramm einer HPLC-Be-Abtrennung von einem p-bestrahlten Cu-Target (analytische Säule: 4,6 mm Durchmesser, 150 mm Länge); Injektionsvolumen 100 μ l; Temperatur: 40° C; Druck: 20 MPa; Eluentenfluß: 2,0 ml/min; Eluent: 5 mM Citronensäure/ 1mM Pyridin-2,6-dicarbonsäure / 3,5 mM Ethylendiamin

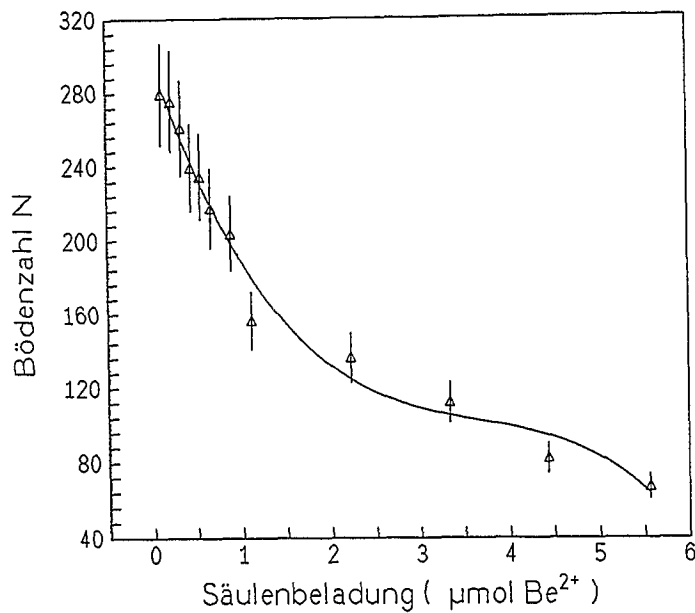


Abb. 3.11: Abhängigkeit der Bödenzahl N von der Be-Säulenbeladung (analytische Säule: 4,6 mm Durchmesser, 150 mm Länge; Temperatur: 40°C; Druck: 20 MPa; Eluentenfluß: 2,0 ml/min; Eluent: 5 mM Citronensäure/ 1mM Pyridin-2,6-dicarbonsäure / 3,5 mM Ethylendiamin; Mn^{2+} - Trägermenge: 1 μg)

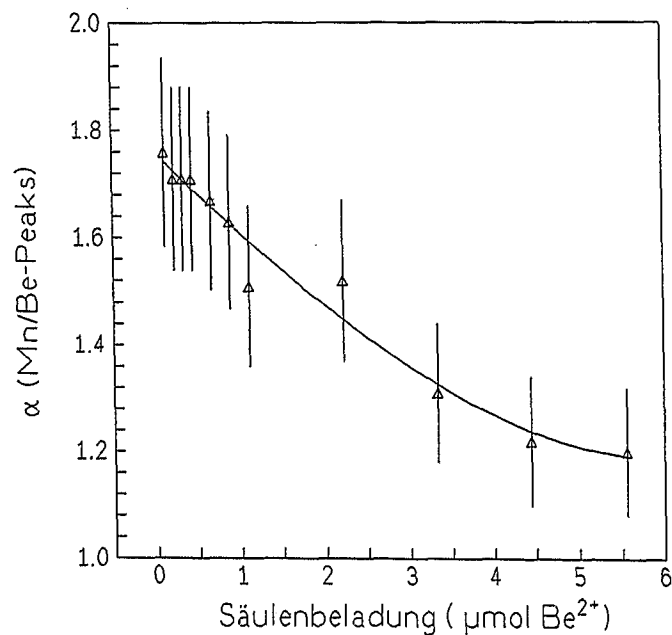


Abb. 3.12: Abhängigkeit der Auflösung α für die Peaks Mn/Be von der Be-Säulenbeladung. (analytische Säule: 4,6 mm Durchmesser, 150 mm Länge; Temperatur: 40°C; Druck: 20 MPa; Eluentenfluß: 2,0 ml/min; Eluent: 5 mM Citronensäure/1mM Pyridin-2,6-dicarbonsäure / 3,5 mM Ethylendiamin; Mn^{2+} -Trägermenge: 1 μg)

3.6.3 Ermittlung der chromatographischen Trennausbeute

Um die Trennausbeute zu bestimmen, mußte die Menge an tatsächlich abgetrenntem Beryllium/Natrium ermittelt werden. Da bei der analytischen HPLC nicht wägbare Trägersmengen ($\sim 100 \mu\text{g}$) eingesetzt wurden, mußten diese mit Hilfe einer Kalibrierkurve über die detektierte Leitfähigkeit rückbestimmt werden. Hierzu wurde die Trennsäule bei konstanten Trennbedingungen (Eluentenzusammensetzung, Fluß, Temperatur, Druck) mit Be-Standardlösungen (50 und 1000) ppm von variierenden Volumina (5-100 μl) beschickt und die Fläche zwischen Be-Peak und Basislinie mit Hilfe des Auswerteprogramms ausgerechnet. Aus der durch kubische Anpassung der Meßpunkte erhaltenen Eichkurve (Abb. 3.13) konnte nun aus der Peakfläche die Menge eluierten Berylliums für eine gegebene Trennung ermittelt werden.

In die Fehlerbetrachtung für die Kalibrationspunkte, die mit einer relativen Unsicherheit von etwa 7-15% behaftet waren, gingen die Fehler für Injektionsvolumen, Gehalt der Standardlösung, Leitfähigkeitsdetektion und Peakflächenintegration (verschieden wählbare Integrationsgrenzen) ein. Eine weitere Unsicherheit ergab sich dadurch, daß die detektierte Be-Menge nicht gleich der rückgewonnenen war, da eine quantitative Isolation des hinter dem Detektor aufgefangenen Berylliums nur näherungsweise möglich war.

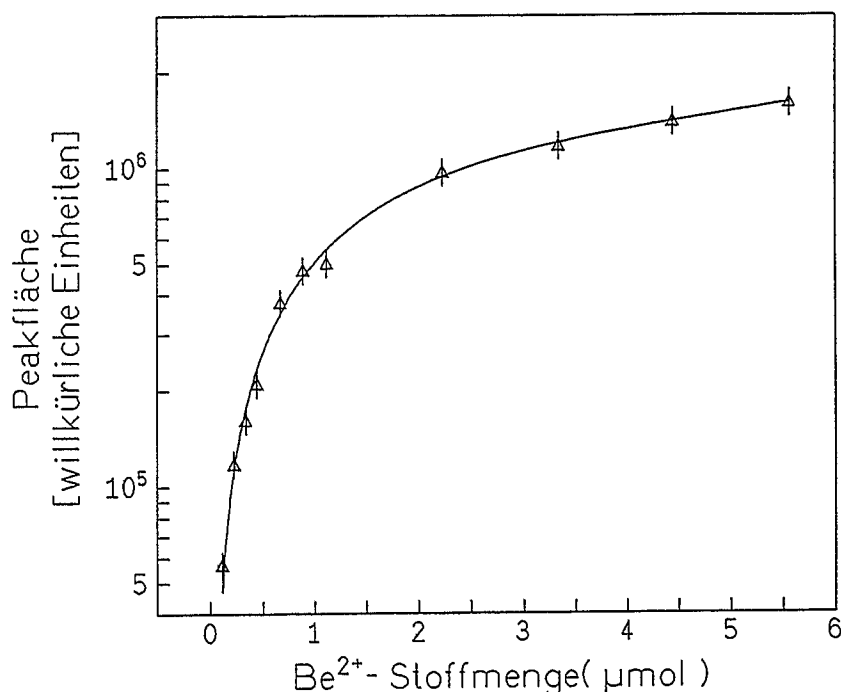


Abb. 3.13: Kalibrierkurve für die analytische Trennsäule; Meßpunkte mit kubischer Anpassung (cube spline fit). Temperatur 40°C; Druck: 20 MPa; Eluentenfluß: 2,0 ml/min; Eluent: 5 mM Citronensäure/ 1mM Pyridin-2,6-dicarbonsäure / 3,5 mM Ethylendiamin

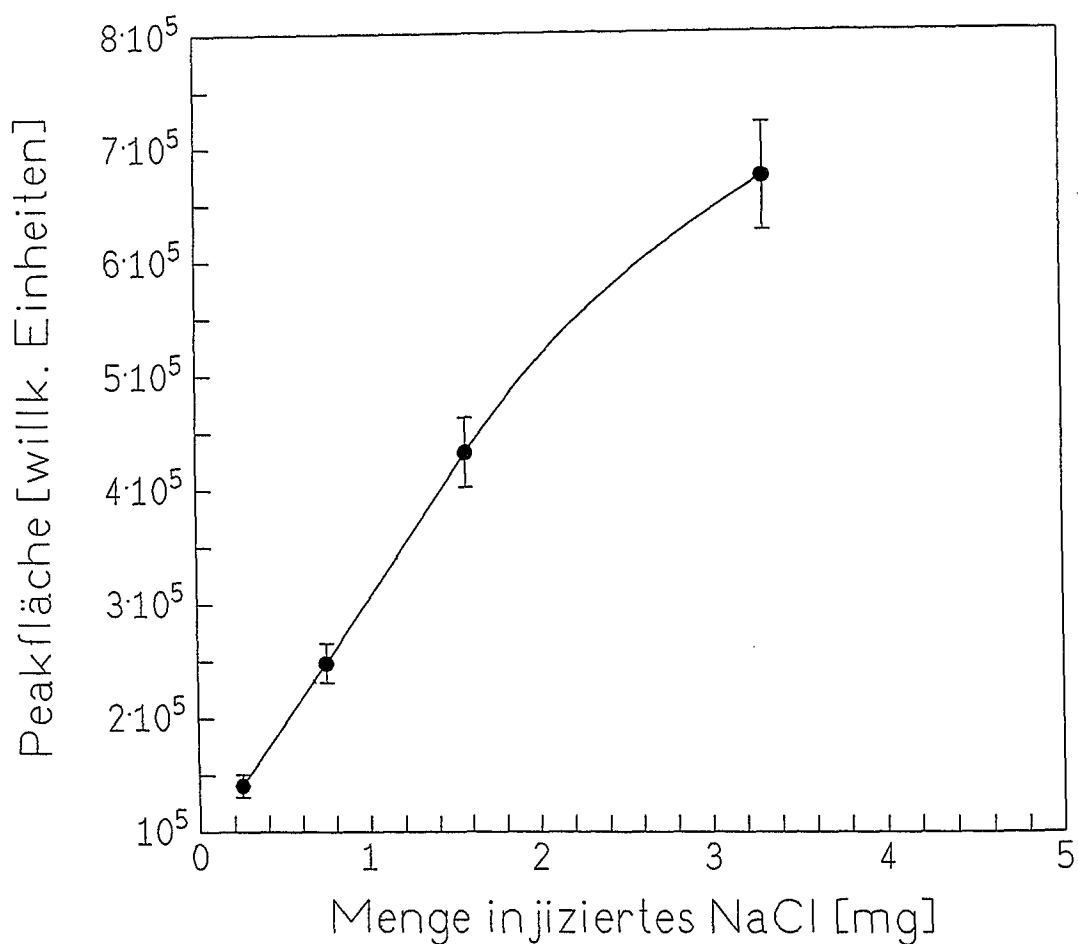


Abb. 3.14: NaCl-Kalibrierkurve für die semipräparative Trennsäule; Eluent 10 mM-HNO₃; Temperatur 40 °C; Fluß: 6,0 ml/min. Meßpunkte mit interpolativer Anpassung

Abb. 3.14 zeigt eine Kalibrierkurve zur Bestimmung von abgetrenntem Träger-NaCl für die semipräparative Trennsäule.

3.6.4 ⁷Be-Abtrennung aus Eisen

Bestrahlte Fe-Targets enthielten die längerlebigen Radioisotope

⁵⁶Co ($T_{1/2}$ = 78,8 d), ⁵⁷Co (271,3 d), ⁵⁸Co (70,8 d)

⁵⁴Mn (312,2 d)

⁵¹Cr (27,7 d)

⁴⁸V (17,0 d)

⁴⁶Sc (83,8 d), ⁴⁷Sc (3,4 d),

die eine zerstörungsfreie ^7Be -Detektion verhinderten. Vor der HPLC-Trennung mußte das makroskopische Targetmaterial abgetrennt werden. Hierzu wurden die Folien (~200 mg) in ca. 20 ml Königswasser aufgelöst, die Lösung anschließend vollständig abgeraucht und hernach wieder in 10 ml konz. Salzsäure aufgenommen. Nach Zugabe von 100 μl 1000 ppm- Be^{2+} -Standardlösung (100 μg) und jeweils 20 μl 50 ppm-Standardlösungen der Ionen Sc^{3+} , VO^{3+} , Cr^{3+} , Mn^{2+} und Co^{2+} , wurde Fe^{3+} als FeCl_3 durch mehrminütiges Schütteln mit 5 x 20 ml Diisopropylether, der vorher mit rauchender Salzsäure HCl -gesättigt wurde, extrahiert und die organischen Phasen verworfen.

Die wässrige Phase wurde zunächst eingeeengt und dann, auf einer möglichst kleinen Fläche konzentriert, bis fast (!) zur Trockene eingedampft. Der feuchte Rückstand konnte nun nach sorgfältiger Aufnahme mit 150 μl 0,01-N-HCl in die Probenschleife eingeführt (Eluenskonzentration für die analytische Säule), über die analytische Säule getrennt und die eluierende Lösung in Fraktionen aufgefangen werden. Die der in Kap. 3.6.2 ermittelten Be^{2+} -Elutionszeit entsprechenden Fraktionen (~ 10-15 ml) wurden vereinigt, auf etwa 5 ml eingeeengt und 3-5 x mit roter, rauchender Salpetersäure bis zur Trockene abgeraucht, um die Eluent-Carbonsäuren zu zerstören. Der Rückstand wurde in 5 ml rauchender Salzsäure aufgenommen, mit 10 ml Wasser verdünnt und mit einer definierten Menge (~10 mg) Be-Pulver versetzt. Anschließend wurde $\text{Be}(\text{OH})_2$ im $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$ -Puffer ausgefällt [vgl. GME 30]. Das $\text{Be}(\text{OH})_2$ wurde über ein 3 μ -Membranfilter abfiltriert, 3 h bei 800°C geglüht und ausgewogen. Aus der chromatographischen und Fällungsausbeute ergab sich die Gesamt-Trennausbeute für ^7Be . Durch γ -spektrometrische Untersuchung des geglühten $[^7\text{Be}]\text{BeO}$ erhielt man die ^7Be -Aktivität zur Wirkungsquerschnittbestimmung. Der schematische Verlauf der Trennungsarbeitsgänge ist in Abb. 3.15 wiedergegeben.

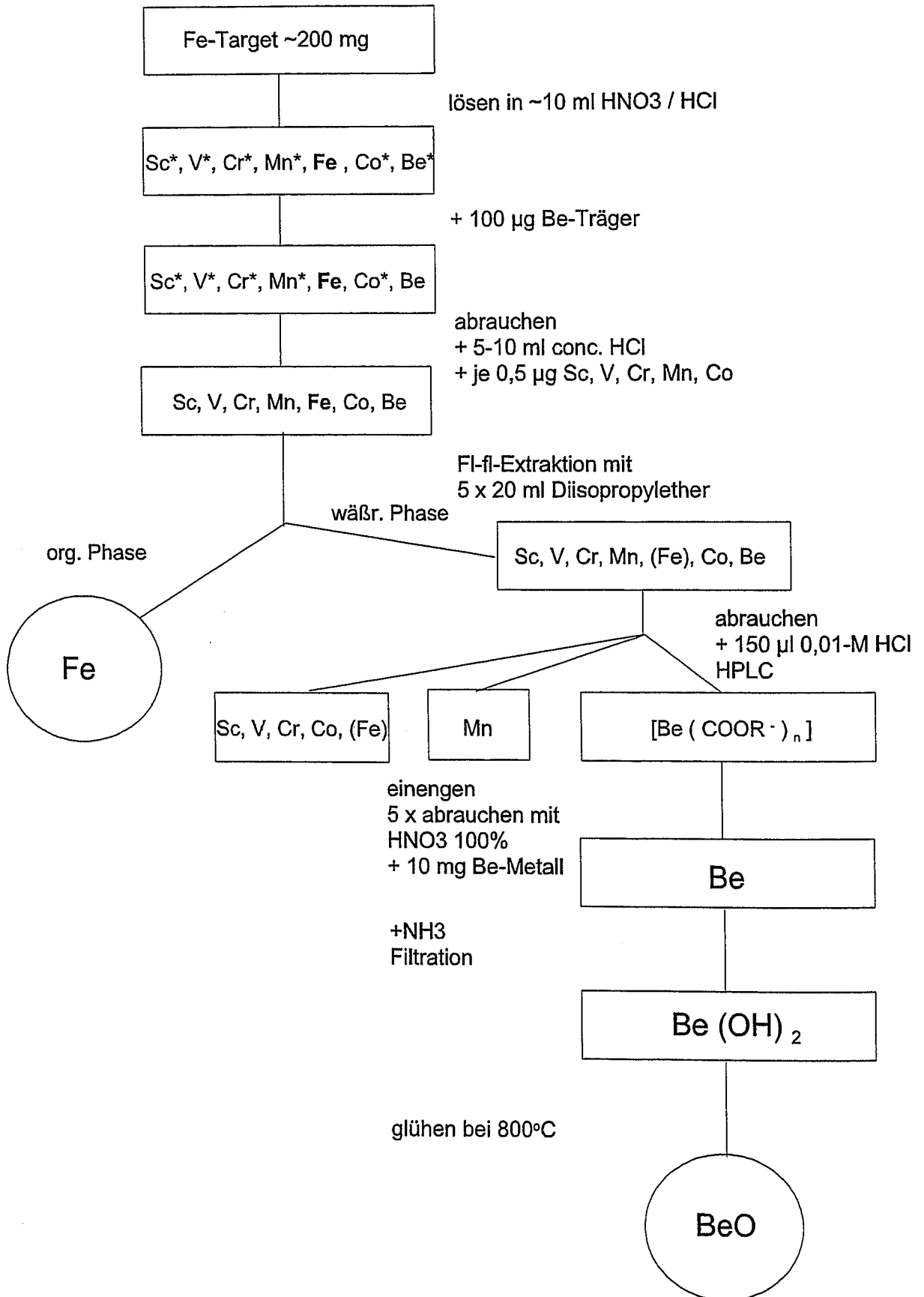


Abb. 3.15: Fließschema zur chemischen Abtrennung von geträgertem ^7Be aus bestrahlten Fe-Targets

Durch Aufzeichnung der Leitfähigkeit erhielt man das in Abb 3.16 wiedergegebene Chromatogramm, aus dem auch das eluierte Be (Peak nach 11,25 min) quantitativ bestimmt wurde. Die Nebengruppenmetallkationen sind im Chromatogramm nicht sichtbar, da einerseits die eingesetzte Trägermenge (0,5 µg) für die gewählte Detektionsempfindlichkeit zu gering war und andererseits die Detektion der eluierenden Ionen durch die hohe Solvent-Säurekonzentration (1.-6. min) verhindert wurde. Eluierende Kationen verursachen einen Rückgang der Eluens-Leitfähigkeit, da sie durch Protonen mit höherer spezifischer Leitfähigkeit ausgetauscht werden. Dementsprechend wurde die Leitfähigkeit revers detektiert.

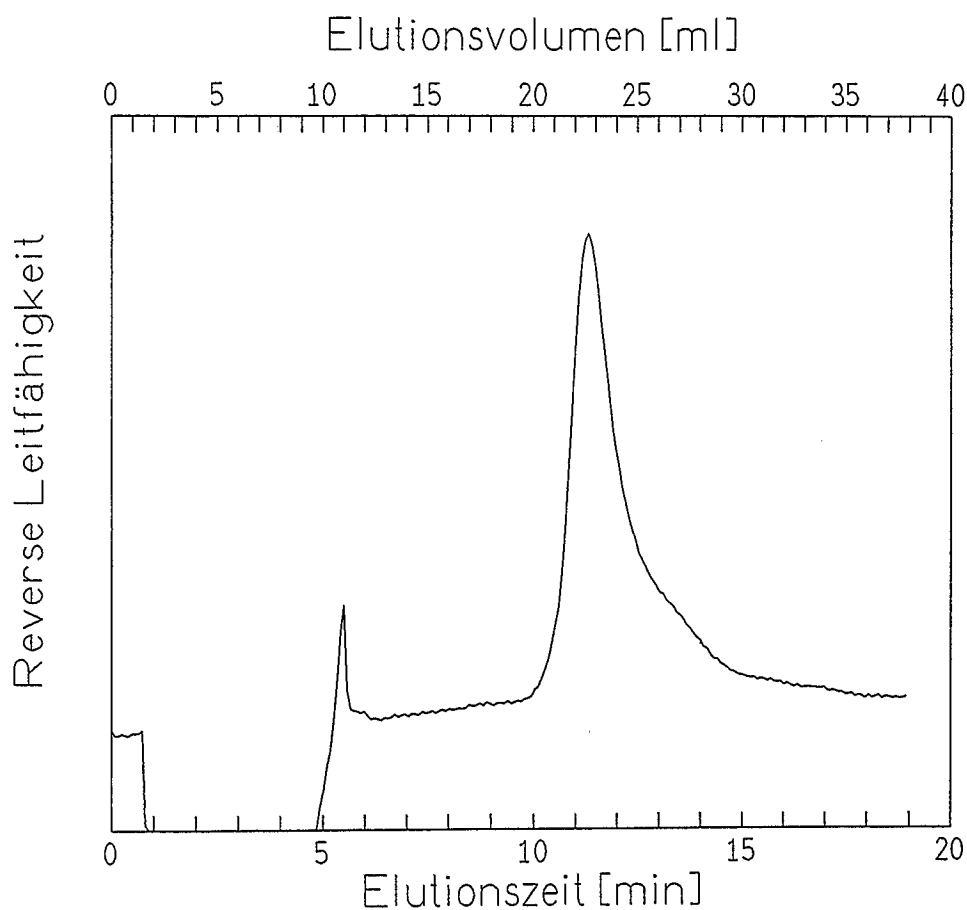


Abb 3.16: Leitfähigkeits-Elutionsdiagramm der Be-Abtrennung von einer bestrahlten Fe-Folie.
(analytische Säule: 4,6 mm Durchmesser, 150 mm Länge; Temperatur: 40°C; Druck: 20 MPa; Eluentenfluß: 2,0 ml/min; Eluent: 5 mM Citronensäure/1mM Pyridin-2,6-dicarbonsäure / 3,5 mM Ethylendiamin; Nicht-Be-Kationen - Trägermenge: 0,5 µg, 30 µS Vollausschlag, Eluentenfluß 2 ml/min)

Abb 3.17 zeigt die γ -Spektren des unzerstörten Fe-Targets und des nach dem Glühen vorliegenden $[^7\text{Be}]\text{BeO}$. Der in der ursprünglichen Probe nicht erkennbare 477 keV-Peak des ^7Be war nach der Trennung gut sichtbar. Viele γ -Linien von Verunreinigungen waren in der abgetrennten Probe nicht mehr zu sehen. Die Zählraten dürfen nicht direkt verglichen werden, da hier die chemische Trennausbeute noch nicht berücksichtigt ist. Der scharfe Peak bei 320 keV rührt von einer restlichen ^{51}Cr -Kontamination her.

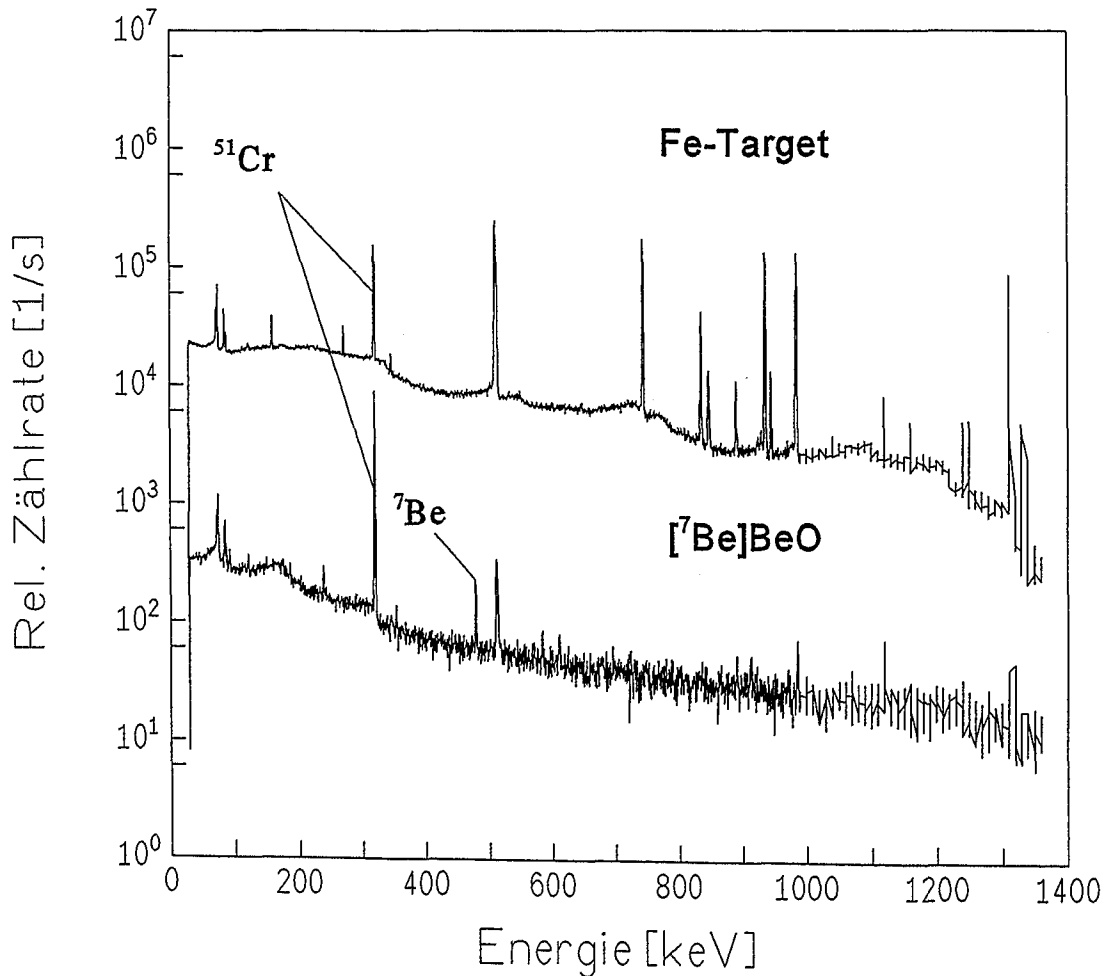


Abb 3.17.: γ -Spektren der bestrahlten Fe-Folie und des als $[^7\text{Be}]\text{BeO}$ vorliegenden ^7Be . Die 477-keV-Linie des ^7Be war erst nach der Trennung zu sehen

3.6.5 ^7Be -Abtrennung aus Kupfer und den Kupferverbindungen CuCl , Cu_3P , Cu_2S

Mit Hochenergieprotonen bestrahlte Kupferkerne lieferten über die in Kap. 3.6.2 aufgezählten Aktivierungsprodukte hinaus zusätzlich das Zinkisotop ^{65}Zn ($T_{1/2} = 244$ d). Die Aufarbeitung der in dieser Arbeit verwendeten Kupfer- und Kupfersalz-Targets verlief einander ähnlich; Kupfer und Kupfer-I-chlorid wurden in ca. 20 ml konz., Kupfer-I-phosphid und Kupfer -I-sulfid dagegen in 20 ml verd. Salpetersäure aufgelöst, mit 100 μl 1000 ppm- Be^{2+} -Standardlösung (100 μg) und jeweils 20 μl 50 ppm-Standardlösungen der Ionen Sc^{3+} , VO^{3+} , Cr^{3+} , Mn^{2+} und Co^{2+} versetzt. Anschließend wurde $\text{Be}(\text{OH})_2$ mit NH_3 ausgefällt und über einen $3\mu\text{-Membranfilter}$ abgenutscht. Die Fällung wurde mit wenigen Tropfen konz. Salzsäure vom Filter gelöst, die Lösung zur Trockene eingedampft und der Rückstand mit 150 μl 0,01-N-HCl zur HPLC-Trennung aufgenommen.

Einige Trennungen wurden nach der semipräparativen Methode durchgeführt. Hierzu wurden den aufgelösten Targets direkt 10,0 mg Be-Pulver als Träger zugefügt, zur Trockene eingedampft und der Rückstand mit 1 ml 0,1-N-HCl aufgenommen. Die Lösung wurde in zehn 100 μl -Einschüsse aufgeteilt und nacheinander über die HPLC getrennt. Die Be-Fractionen aus den einzelnen Trennungsgängen wurden vereinigt, das Eluens nach Zugabe von rauchender HNO_3 abgedampft und Be aus der Rückstand wie oben beschrieben rückgewonnen.

Den schematischen Arbeitsgang zur Trennung von Be aus Kupfer und -verbindungen zeigt Abb. 3.18; Abb. 3.19 zeigt das Leitfähigkeitschromatogramm für eine semipräparative Trennung von Be aus kupferhaltigen Targetverbindungen. Erwartungsgemäß verkürzte sich die Elutionszeit für Be entsprechend einem erhöhten Eluentenfluß. In Abb. 3.20 sind die γ -Spektren eines bestrahlten Cu_3P -Targets und des entsprechenden Trennungsproduktes $[^7\text{Be}]\text{BeO}$ dargestellt.

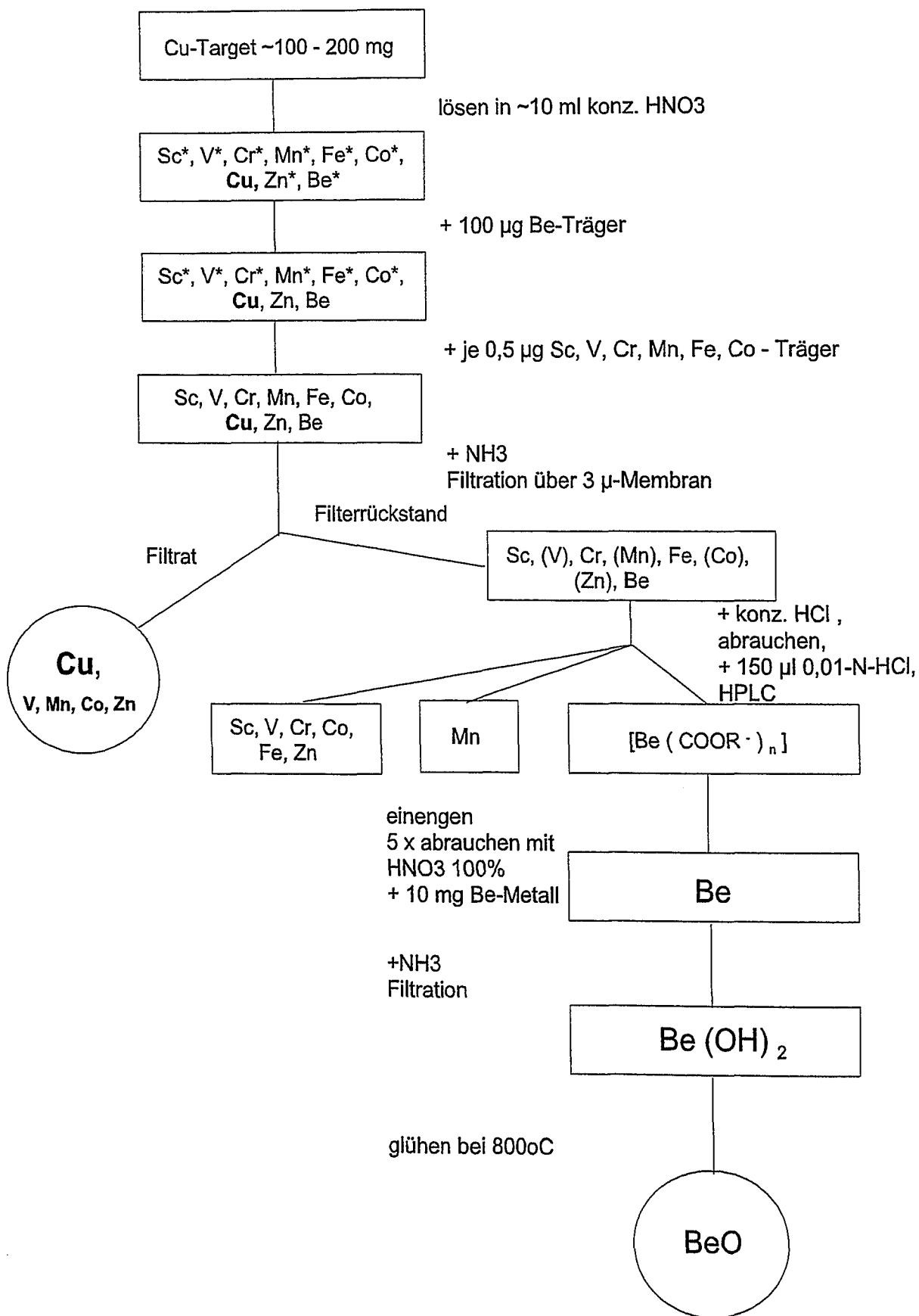


Abb. 3.18: Fließschema zur chemischen Abtrennung von geträgertem ^7Be aus bestrahlten Cu-Targets (ähnlich für CuCl , Cu_2S , Cu_3P)

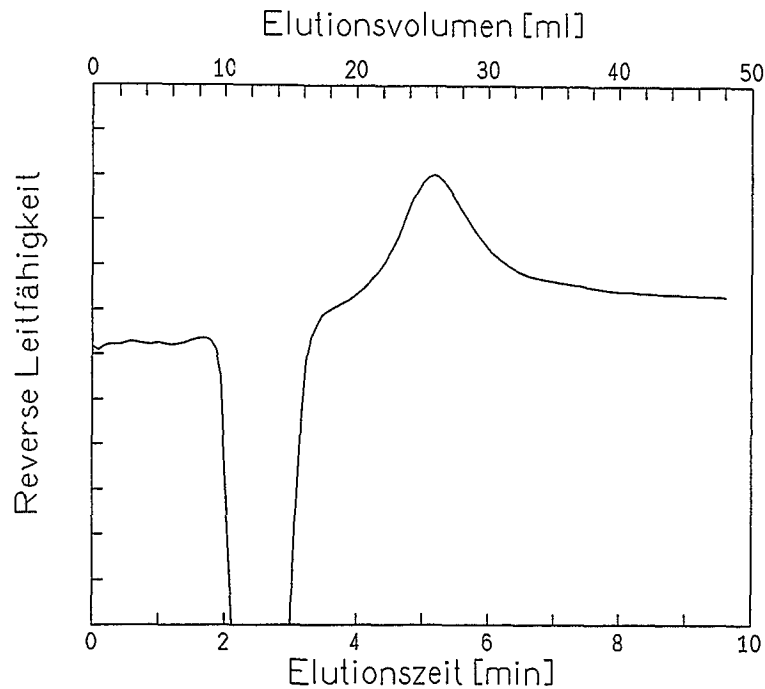


Abb. 3.19: Leitfähigkeitschromatogramm einer semipräparativen HPLC-Be-Abtrennung von Cu-Verbindungen (semipräparative Säule: 7,5 mm Durchmesser, 250 mm Länge; Temperatur: 40°C; Druck: 20 MPa; Eluentenfluß: 2,0 ml/min; Eluent: 50 mM Citronensäure/10mM Pyridin-2,6-dicarbonsäure / 35 mM Ethylendiamin; Nicht-Be-Kationen -Trägermenge: 0,5 µg, 30 µS Vollausschlag, Eluentenfluß 5 ml/min)

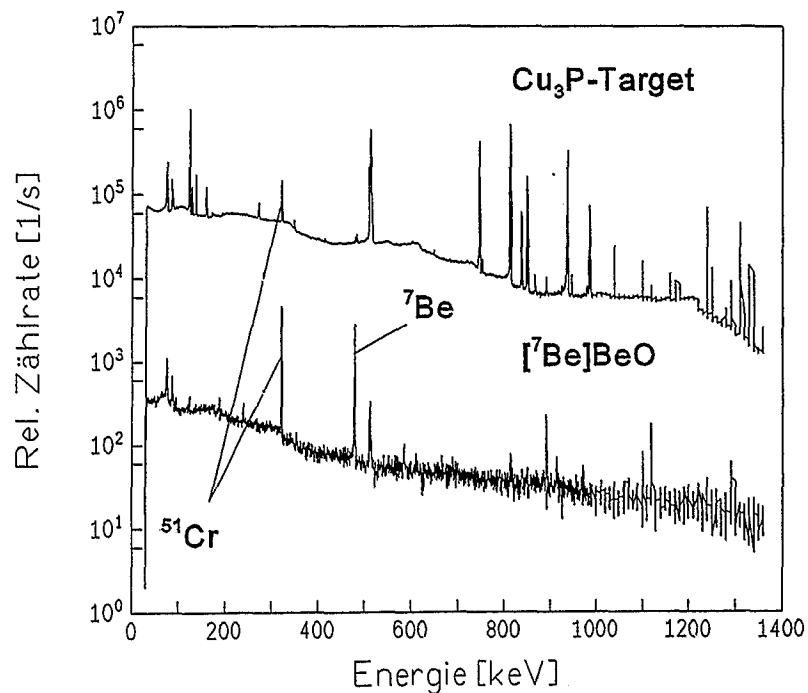


Abb 3.20: γ-Spektren eines bestrahlten Cu_3P -Targets und des als $[\text{}^7\text{Be}]\text{BeO}$ vorliegenden ^7Be . Die 477-keV-Linie des ^7Be war erst nach der Trennung zu sehen

3.6.6 Abtrennung von Na-Aktivitäten aus Nebengruppenmetallen und -verbindungen

Mit Hilfe der in 3.6.1 vorgestellten Trennmethode wurde geträgertes ^{22}Na aus bestrahlten Cu-Folien abgetrennt. Hierzu wurde die Cu-Folie (~180 mg Cu) zusammen mit einer definierten Menge (50-100 mg) NaCl in konz HCl/ H_2O_2 aufgelöst, mit einer wässrigen Lösung aus je 1-2 mg Rückhalteträgersalz versetzt und anschließend bis zur Trockene abgeraucht. Zum quantitativen Entfernen überschüssigen Peroxids wurde 3-5 mal mit konz. HCl aufgenommen und bis zur Trockene abgeraucht. Der Rückstand wurde wieder mit wenigen ml 25%-iger HCl aufgenommen, leicht erwärmt und unter Rühren mit einer heißen wässrigen Lösung von 220 mg Thioacetamid versetzt. Nach Schwarzfärbung ($\text{CuS}\downarrow$) der Lösung wurde über Blauband-Filterpapier abfiltriert. Das Filtrat wurde mit konz. NH_3 versetzt und die ausfallenden Sulfide der basischen H_2S -Gruppe (von Co, Ni, Mn, Zn) wiederum abfiltriert. Kolloidal gelöste Sulfide konnten durch mehrminütiges Kochen der Lösung nach Zugabe kleiner Filterpapierschnipsel vollständig ausgefällt und abfiltriert werden.

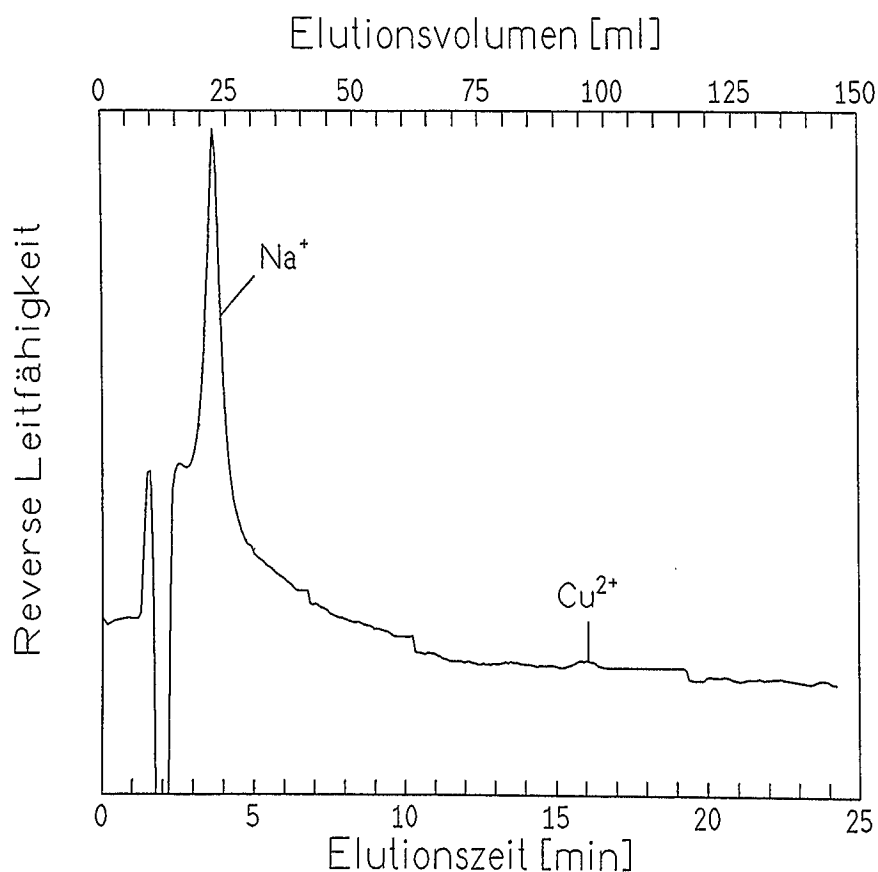


Abb. 3.21: $[^{22}\text{Na}]\text{NaCl}$ - HPL-Chromatogramm; Eluent: 10 mM HNO_3 ; Fluß: 6,0 ml/min; Säulentemperatur: 40 °C

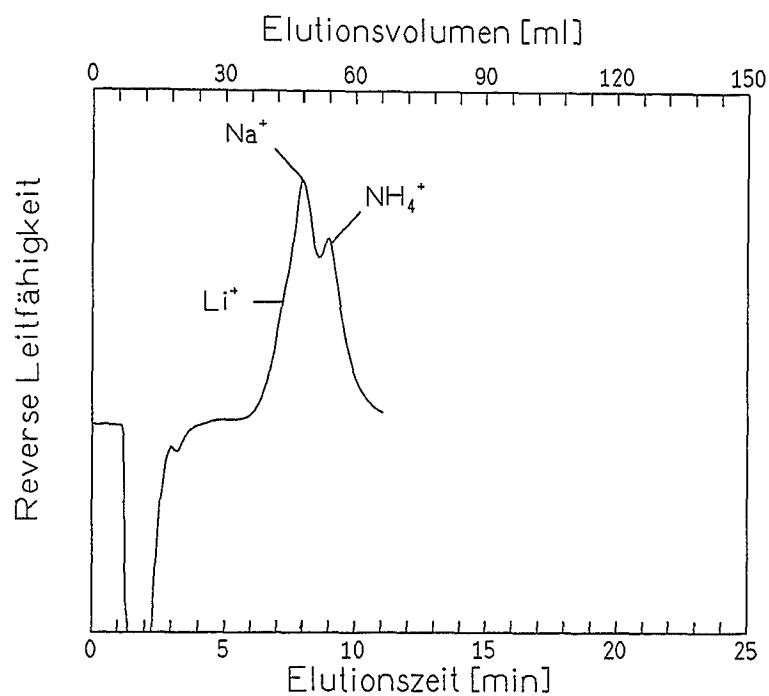


Abb 3.22: Chromatogramm eines Li/Na/NH₄-Salzgemisches; Eluent: 10 mM HNO₃; Fluß: 6,0 ml/min; Säulentemperatur: 40 °C

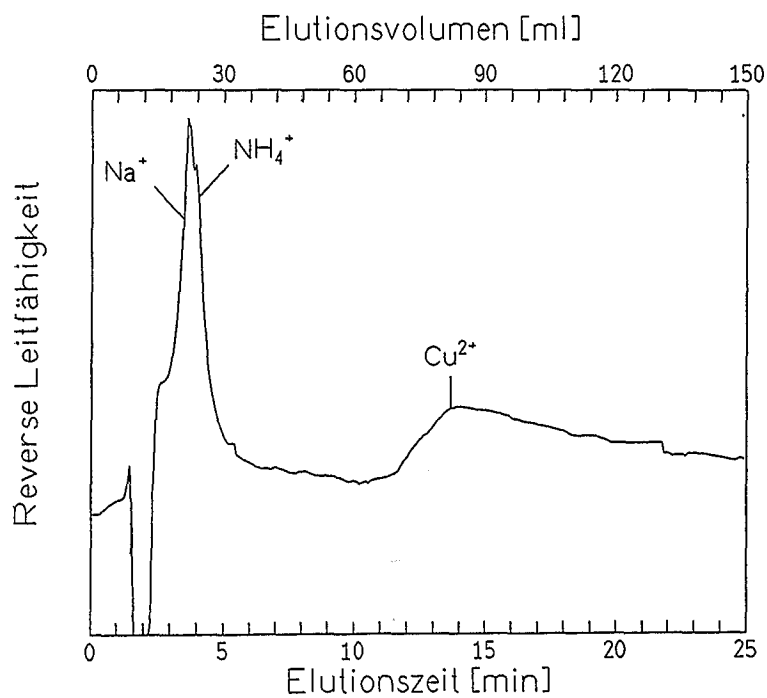


Abb 3.23: Chromatogramm eines Na/NH₄/Cu-Salzgemisches; Eluent: 10 mM HNO₃; Fluß: 6,0 ml/min; Säulentemperatur: 40 °C

Zur HPLC-Feinreinigung wurde das klare Filtrat bis zur Trockene eingedampft und eine Stunde lang auf 500 °C erhitzt, um störende Ammoniumverbindungen zu vertreiben. Der Rückstand wurde mit etwa 100 µl Eluentlösung aufgenommen; es wurde abermals über ein kleines Filter filtriert und das Filtrat auf ein Uhrglas getropft. Der Tropfen wurde mit einer Mikroliter-Spritze vorsichtig aufgenommen und auf die semipräparative Kationenaustauschersäule injiziert. Abb. 3.21 zeigt das HPL-Chromatogramm der $[^{22}\text{Na}]\text{NaCl}$ -Probe. Die eluierte NaCl-Fraktion wurde bis zu Trockene eingedampft, hernach einige Stunden bei 150°C getrocknet, ausgewogen und γ -spektrometrisch untersucht.

In den Abb. 3.22 und 3.23 sind die Chromatogramme von Gemischen aus Metallsalz-Standardlösungen dargestellt. Die Alkalimetalle Li, Na und das Ammoniumion sind mit Hilfe dieser semipräparativen Trennmethode nicht zu trennen; Li eluiert nahezu gleichzeitig mit Na^+ ; NH_4^+ und Na^+ erscheinen als Doppelpeak (Abb. 3.22). Aufgrund der hohen Austauscher-Affinität der zweiwertigen Ionen eluieren Cu^{2+} und andere Nebengruppenmetallionen sehr viel später als Alkaliionen; ferner zeigt der Cu^{2+} -Peak ein sehr starkes Tailing (Abb. 3.23). Integration des in Abb. 3.21 auftretenden Na^+ -Singulett-Peaks bei 4,2 min lieferte die NaCl-Trennausbeute. Die Na^+ -Fraktion wurde aufgefangen und mit 125 mg NaCl als Fällungsträger versetzt. Nach Eindampfen der Lösung und Trocknen des rückgewonnenen NaCl-Rückstandes wurde ausgewogen und ^{22}Na γ -spektrometrisch bestimmt. Die Zählrate wurde auf Trenn- und Fällungsausbeute korrigiert.

3.6.7 Fehlerdiskussion

Der Hauptvorteil der Kationen-HPLC gegenüber einem klassischen Trennungsgang lag in einer schnellen, simultanen Abtrennung mehrerer Kationen. Im Falle des Cu_3P hätte ferner eine vorherige Abtrennung der durch Oxidation mit HNO_3 gebildeten PO_4^{3-} -Anionen erfolgen müssen, um eine störende Mitfällung als Be-Phosphat zu verhindern. Nachteilig war die Erfordernis von zwei Ausbeutekorrekturen unter Verwendung der Be/Na-Peakflächen, da sich hierdurch der Fehler für die Wirkungsquerschnitte erhöhte. Bei der semipräparativen Be-Trennung fiel die quantitative Bestimmung der eluierten Be-Menge durch Detektion weg, da hierbei eine wägbare Be-Trägermenge eingesetzt werden konnte; es war jedoch bei der gewählten experimentellen Anordnung eine mehrmalige Probeninjektion erforderlich. Bei der analytischen Trennung wurde die Menge des Trennungsträgers bei der Ausbeutekorrektur nicht berücksichtigt, da sie vernachlässigbar klein war gegenüber der Fällungsträgermasse. Im Falle der semipräparativen Na-Abtrennung wurde die chromatographisch abgetrennte NaCl-Menge bei der Fällungsausbeute berücksichtigt.

Bei der Wahl der Eluentenzusammensetzung war die Zielsetzung der möglichst guten Be-Abtrennung von allen anderen Metallionen maßgeblich; auf eine weitere Auftrennung anwesender Metallionen wurde weniger Wert gelegt, da dies auf Kosten der Be-Reinheit hätte geschehen müssen. Im Falle des Trennsystems Nebengruppenmetalle/Na wäre u.U. eine Gradientenelution von Vorteil gewesen, um die recht langen Elutionszeiten der Nebengruppen gegenüber Na zu verkürzen. Ein weiterer Punkt von Bedeutung bei der Na-Abtrennung war die Anwesenheit von Ammoniumsalzüberresten, die über die HPLC bei den gewählten Bedingungen nur schlecht vom Natrium abgetrennt werden konnten. Zwar ist eine Reinheitskontrolle über die Na-Peakform möglich, doch mußte ein gewisser Fehler bei der Peakflächenermittlung einkalkuliert werden.

4. Kernmodellrechnungen

4.1 Precompound-Hybrid-Modell

Das Hybrid-Modell für den Precompound-Prozeß nach Blann [vgl. BLA 83] wird durch den Ausdruck

$$P_v(\epsilon)d\epsilon = \sum_{n=n_0}^{n_{gl}} \frac{X_{n,v} N_n(\epsilon, U)}{N_n(E)} g d\epsilon \cdot \frac{\lambda_c(\epsilon)}{\lambda_c(\epsilon) + \lambda_+(\epsilon)} D_n \quad (4.1)$$

wiedergegeben, wobei der Emissionswirkungsquerschnitt $d\sigma_v(\epsilon)/d\epsilon$ des Teilchens v durch die Gleichung

$$\frac{d\sigma_v(\epsilon)}{d\epsilon} = \sigma_R P_v(\epsilon)$$

beschrieben wird. Hierbei ist $P_v(\epsilon)d\epsilon$ die Anzahl v -Teilchen mit einer Energie zwischen ϵ und $\epsilon+d\epsilon$, die in das Kontinuum emittiert werden, n_0 die Excitonenanzahl im Eingangszustand (z.B. $n_0=3$), n_{gl} die Excitonenanzahl im Gleichgewicht, $X_{n,v}$ die v -Teilchenanzahl im n -Excitonenzustand, $N_n(E)$ die Anzahl der möglichen n -Exciton-Kombinationen auf die sich die Anregungsenergie E aufteilt, $N_n(\epsilon, U)$ die Anzahl der Realisierungsmöglichkeiten des n -Excitonenzustandes, so daß ein Teilchen, wenn es emittiert würde, die Energie ϵ und die übrigen $(n-1)$ Excitonenzustände zusammen die verminderte Anregungsenergie $U = E - B_v - \epsilon$ hätten, wobei B_v die Bindungsenergie des v -Teilchens ist; $g=A/14,0$ die einfache Teilchenniveaudichte, $\lambda_c(\epsilon)$ die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines Teilchens mit der Energie ϵ in das Kontinuum, $\lambda_+(\epsilon)$ die Wahrscheinlichkeit für Erzeugung komplexerer Excitonenzustände für ein Teilchen, das die Energie ϵ hätte, wenn es in das Kontinuum entweichen würde. D_n entspricht dem durchschnittlichen Bruchteil der Eingangspopulation, der bis zur Bildung der Anzahl n_{gl} Excitonen überlebt (Depletion factor). σ_R ist der Reaktionswirkungsquerschnitt.

Der Term in der ersten Zeile repräsentiert die bei einer gegebenen Energie ϵ vorfindbare Anzahl (pro MeV) Teilchen für alle Streuprozesse, die zu einem " n "-Excitonenzustand führen. Es wurde gezeigt, daß die Nukleon-Nukleon Streuenergie-Verteilungsfunktion $N_n(E)$ zur Exciton-Zustandsdichte $\rho_n(E)$ identisch ist, so daß sie aus N-N-Streuquerschnittsmessungen errechnet werden kann. Die zweite Zeile gibt den Bruchteil der v -Teilchen-Population wieder, der in das Niveau-Kontinuum entweicht, ehe ein intranuklearer Übergang stattfindet.

Vergleiche zwischen experimentellen Ergebnissen, dem Precompound-Excitonen-Modell und Intranuclear-Cascade (INC)-Rechnungen zeigten zunächst [HAR 71], daß das Excitonen-Modell zu wenig Precompound-Teilchen vorhersagte, die ferner in ihrer spektralen Verteilung zu energiearm waren, um die erwartete Eingangs-Excitonenkonfiguration zu erzeugen. Dieses Defizit des Excitonen-Modells resultierte aus einer fehlerhaften Reproduktion der erhöhten Emissionsrate an der Kernoberfläche. Solche Eigenschaften einer diffusen Kernoberfläche finden ihre Berücksichtigung im sogenannten geometrieabhängigen Hybridmodell (geometry-dependent hybrid model, GDH). Das differentielle Emissionsspektrum ist danach durch

$$\frac{d\sigma_v(\epsilon)}{d\epsilon} = \pi \lambda^2 \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) T_l P_v(l, \epsilon) \quad (4.2)$$

gegeben, wobei λ die reduzierte Wellenlänge des Protons, T_l der Transmissionskoeffizient für die l -te partielle Wellenfunktion und l die Drehimpulsquantenzahl in Einheiten von $\hbar$ bedeuten. Die geometrieabhängigen Einflüsse äußern sich auf zwei Weisen im GDH-Modell: Zunächst wird eine größere mittlere freie Weglänge für Nukleonen im diffusen Kernoberflächenbereich vorhergesagt. Es zeigt sich, daß dieser Oberflächeneffekt die vorhergesagten Emissionswahrscheinlichkeiten in der gleichen Weise beeinflußt wie eine Erhöhung der freien Weglänge im Hybridmodell um etwa den Faktor 2. Zum anderen nimmt das GDH-Modell an, daß die Bildung von (Excitonen-)Löchern am Boden des Fermi-Gas-Potentialtopfes extrem unwahrscheinlich ist, da gemäß der "Goldenen Regel der Quantenmechanik" die Übergangswahrscheinlichkeit $w(1-2)$ proportional zur Dichte der möglichen Realisierungs-Endzustände $dN/d\epsilon$ ist:

$$w(1-2) = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \int \psi_1^* H \psi_2 d\tau \right|^2 \frac{dN}{d\epsilon} \quad (4.3)$$

4.2 Der Code ALICE-IPPE

4.2.1 Algorithmus

Im Rahmen dieser Arbeit wurden in Zusammenarbeit mit Dr. Yu.N.Shubin aus Obninsk, Russland, Reaktionswirkungsquerschnitte nach dem geometrieabhängigen Excitonmodell [BLA 72, BLA 83] mit Hilfe einer PC-Version [SHU '96] des modifizierten [SHU 95, KON 95a, KON 96] ALICE-FORTRAN-Codes ALICE-IPPE 1996 berechnet. Dieses Programm berücksichtigt die Precompound-Emission freier Nukleonen als auch die Emission von α -Teilchen und Deuteronen. Bei der Berechnung der α -Spektren wurden pick-up- und knock-out-Prozesse einbezogen; Tritonen- und ^3He -Spektren wurden unter Verwendung der Cluster-Bildungswahrscheinlichkeiten nach Sato et al. [SAT 83, vgl. hierzu auch RIB 73, IWA 82] berechnet. Die Abschätzung von Kernniveaudichten geschah auf der Basis des generalisierten Superfluid-Modells [vgl. IGN 93], bei dem, im Gegensatz zum Fermi-Gas-Modell und dem Modell der konstanten Temperatur, auch Nukleonen-Paarungs- und Schaleneffekte berücksichtigt werden.

Der wesentliche Unterschied von ALICE-IPPE 1996 gegenüber ALICE-92 ist die Berücksichtigung der **konkurrierenden Nukleonen- und γ -Emission beim Zerfall des Compoundkerns** bei der Korrektur der Wirkungsquerschnitte. Die Berechnungen von ^7Be -Emissionen war mit Hilfe von ALICE-IPPE 1996 noch nicht möglich.

Zur Berechnung differentieller Wirkungsquerschnitte für die Präequilibrium-Nukleonenemission $d\sigma_{\text{pre}}/d\epsilon$ diene die aus (4.1) und (4.2) abgeleitete Formel :

$$\frac{d\sigma_{\text{pre}}}{d\epsilon} = \pi \lambda^2 \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) T_1 \sum_{n=n_0}^{n_{gl}} \frac{X_{n,v} N_n(\epsilon, U)}{N_n(E)} \cdot \frac{\lambda_c(\epsilon)}{\lambda_c(\epsilon) + \lambda_+(\epsilon)} \cdot g \cdot D_n, \quad (4.4)$$

Die Dichte von Excitonzuständen wurde mit Hilfe der Strutinski-Ericson-Formel

$$N_n(\epsilon, U) = \frac{g(gE-A)^{n-1}}{p!h!(n-1)!} \quad (4.5)$$

ermittelt. Hierbei stellt A den Korrekturfaktor für das Pauli-Prinzip gemäß $A = (p^2 + h^2 + p \cdot 3h)/4$ dar. Die Nukleonen-Emissionsrate ergab sich zu:

$$\lambda_c(\epsilon) = \frac{(2s_v + 1)\mu_v \epsilon_v \sigma_{inv}^v(\epsilon_v)}{\pi^2 h^3 g_v} \quad (4.6)$$

Hierbei sind s_v Spin und μ_v die reduzierte Masse, σ_{inv}^v der inverse Reaktionswirkungsquerschnitt, g_v die einfache Niveaudichte für das betrachtete Teilchen v. Für Protonen ist $g_p = Z/14,0$, für Neutronen entsprechend $g_n = N/14,0$. Die intranukleare Übergangswahrscheinlichkeit wurde nach

$$\lambda_+(\epsilon) = V \sigma_0(\epsilon_v) \rho_l \quad (4.8)$$

ermittelt, wobei V die Geschwindigkeit des Nukleons innerhalb des Kerns, σ_0 der gemäß dem Pauli-Prinzip korrigierte Wirkungsquerschnitt der Nukleon-Nukleon-Wechselwirkung [vgl. KIK 68], ρ_l die Kerndichte ist. Die Kerndichte wurde nach der Fermi-Dichteverteilung

$$\rho_l = \rho_s \left(\frac{e^{R_l - C}}{0,55 \text{ fm}} + 1 \right)^{-1}; \quad C = 1,07 \text{ A}^{1/3} \text{ fm}; \quad R_l = \lambda \left(l + \frac{1}{2} \right) \quad (4.9)$$

ermittelt. ρ_s ist die sogenannte Sättigungsdichte der Kernmaterie.

Auf ähnliche Weise wurden -unter Einbeziehung der Teilchen-Bildungswahrscheinlichkeiten- α - und Deuteronenemission berechnet, wobei noch implementiert wurde, daß einerseits das α -Spektrum aus der Summe dreier Komponenten, entsprechend Pickup- Knockout- und Evaporationsprozessen, besteht und andererseits bei Energien $> 100 \text{ MeV}$ eine Emission von nicht-Gleichgewichts- α -Teilchen nach einer nicht-Gleichgewichtsemission eines Neutrons oder Protons erfolgt.

4.2.2 Parameterwahl

Die Berechnung von Kernreaktionswirkungsquerschnitten mit ALICE-IPPE 1996 erfolgte mit Hilfe einer ASCII-Eingabedatei, in der die Eingabeparameter vom Benutzer vorgegeben wurden. Ein Minimalsatz an Parametern mußte die Massen- und Ladungszahlen von Projektil- (**ap**), (**zp**) und Targetkern (**at**), (**zt**), einen Titel sowie die Laboratoriums-Energie des Projektils enthalten. Unter den zahlreichen optionalen Parametern waren Q-Wert (**qval**), Bruchteil der einfachen Teilchen-Niveaudichte (**cld**), Anzahl der Nuklide (**na**), die für jede Kernladungszahl nach der Emission von Protonen berechnet werden sollten, Anzahl emittierter Ladungen (**nz**) für jede

Kernladungszahl, Option für die Massenberechnung (**mc**), Nukleonenpaarungsoption (**mp**), Niveaudichte-Option (**ldopt**), Spaltbarriere-Option (**ipch**), Anzahl und Art (**m3**) der emittierten Teilchen (Neutronen, Protonen, Deuteronen, α -Teilchen (^4He), Tritonen, τ - Teilchen (^3He), Berechnungsmodus (**jcal**), Anzahl der Eingangsexcitonen (**td**), Eingangsanzahl der angeregten Neutronen (**ex1**) und Protonen (**ex2**), Modell-Option (**tmx**) (Hybrid-geometrieabh. bzw. Hybrid), Art der Übergangswahrscheinlichkeiten (**av**), (**cost**): nach dem optischen Modell ($E < 55$ MeV) oder unter Einbeziehung von mittleren freien Nukleon-Nukleon-Weglängen sowie Isospin-Precompound-Option (**ij**).

Nach Aufruf der ALICE-Execute-Datei wurden zunächst die Niveaudichten nach Ignatyuk [IGN 93] und dann die Spektren $d\sigma/de$ für die emittierten Teilchen, die inversen Wirkungsquerschnitte σ^{INV} sowie die Anregungsfunktionen berechnet und in einer ASCII-Ausgabedatei zusammengestellt.

4.2.3 Qualität der Rechenergebnisse und Programmoptimierung

ALICE-IPPE lieferte für verschiedene Kernreaktionen Rechenergebnisse mit unterschiedlicher Qualität, so daß die Ergebnisse nicht für jeden betrachteten Kernreaktionskanal zufriedenstellend waren; tatsächlich muß der FORTRAN-Code im Einzelfall den zu untersuchenden Prozessen angepaßt werden. Auf diese Weise erhält man quasi iterativ eine zutreffende mathematische Beschreibung des betrachteten Reaktionskanals. Die mit verschiedenen ALICE-IPPE-Versionen berechneten Wirkungsquerschnitte können mitunter um den Faktor 5-6 voneinander abweichen; Abb. 4.1 zeigt verschiedene ALICE-IPPE- Rechenergebnisse für die Prozesse $^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x)^{55,56,58}\text{Co}$, wobei jeweils (physikalisch sinnvolle) Änderungen im FORTRAN-Code vorgenommen wurden, die die numerische Abschätzung der Neutronenemission beim angeregten Nuklid $^{56}\text{Co}^*$ beeinflussen:

1. Wahl der Position des ersten kollektiven 2^+ -Niveaus (**OM₂₊**)
2. Wahl der Parameter beim General Superfluid Model (GSM, **Ign**)
3. Variation der mittleren freien Weglänge (**$\lambda(N-N)^*2$**)
4. Niveaudichte-Parameter für hohe Energien (asymptotischer Wert, **$\alpha_{\text{asympt}}^* \text{scal}$**)

Die dieser Arbeit zugrundeliegende Version wurde von Shubin in erster Linie für die Berechnung von Cu- und Zn-(p,x)-Aktivierungsprodukten angepaßt, so daß die Ergebnisse für die leichteren Targetnuklide erheblich von den experimentellen Werten abwichen.

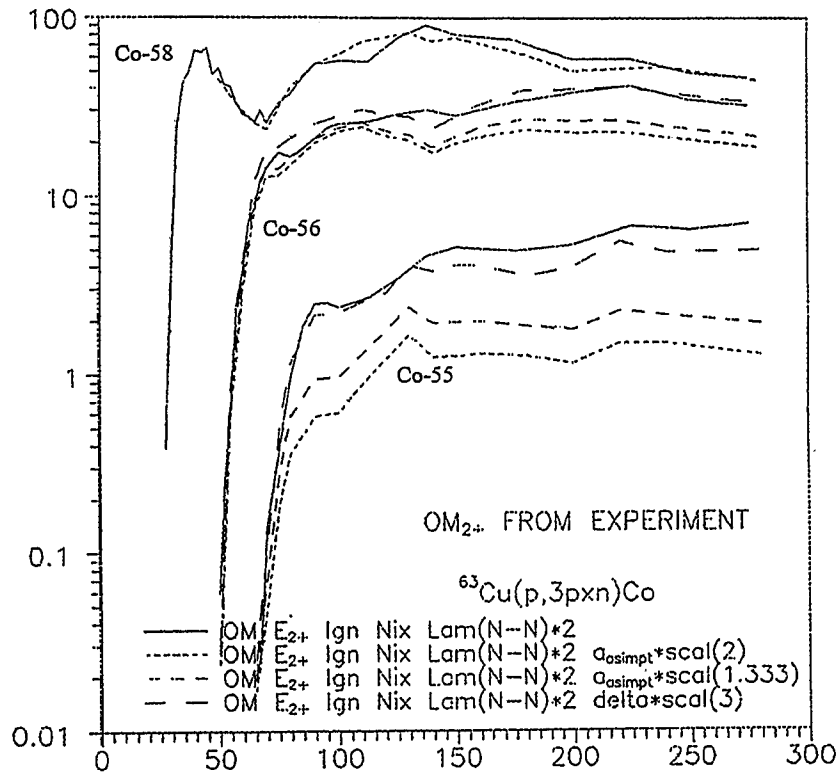


Abb. 4.1: ALICE-IPPE-Anregungsfunktionen für die Prozesse $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{55,56,58}\text{Co}$; Berechnung mit verschiedenen ALICE-IPPE-Versionen

Ferner findet man Abweichungen bei Produktnukliden mit großer Massendifferenz zum Targetkern sowie für Produktnuklide, die sich weiter entfernt von der Linie der β -Stabilität befinden. Zur Berechnung von $(p,x)^{22,24}\text{Na}$ -Wirkungsquerschnitten für die in dieser Arbeit betrachteten Elemente Na, Si, P, S, Cl und die Legierung Messing wurden für die Reinisotope ^{23}Na und ^{31}P sowie für die häufigeren isotopischen Bestandteile der natürlichen Elemente $^{28,29,30}\text{Si}$, $^{32,33,34}\text{S}$, $^{35,37}\text{Cl}$, $^{40,44}\text{Ca}$ jeweils ALICE-Eingabedateien erstellt; die Teilchenenergie wurde in 10 MeV-Schritten von der Schwellenenergie bis zur Berechnungs-Obergrenze 280 MeV gewählt. Weitere Aktivierungsprodukte wurden für die Targetisotope $^{44,48}\text{Ca}$ (Produkte $^{42,43}\text{K}$, $^{44m,48}\text{Sc}$), $^{54,56,57}\text{Fe}$ ($^{44m,47,48}\text{Sc}$, ^{48}V , $^{48,51}\text{Cr}$, ^{52}Fe , ^{55}Co), $^{63,65}\text{Cu}$ (^{47}Sc , ^{48}V , ^{51}Cr , $^{52,54}\text{Mn}$, $^{55,56,58}\text{Co}$, ^{62}Zn) und $^{64,66,67,68}\text{Zn}$ (^{47}Sc , ^{48}V , ^{51}Cr , $^{52,54}\text{Mn}$, $^{55,56,58}\text{Co}$, ^{62}Zn , ^{67}Ga) der Targetelemente Ca, Fe, Cu und Zn berechnet. Aus den Ergebnissen der Ausgabedatei wurden dann gemäß der Isotopenzusammensetzung die Wirkungsquerschnitte für die natürlichen Isotopenzusammensetzung gebildet:

$$\sigma(^{nat}\text{X}) = \sum_i n(^{A_i}\text{X}) \cdot \sigma(^{A_i}\text{X}) \quad (4.10)$$

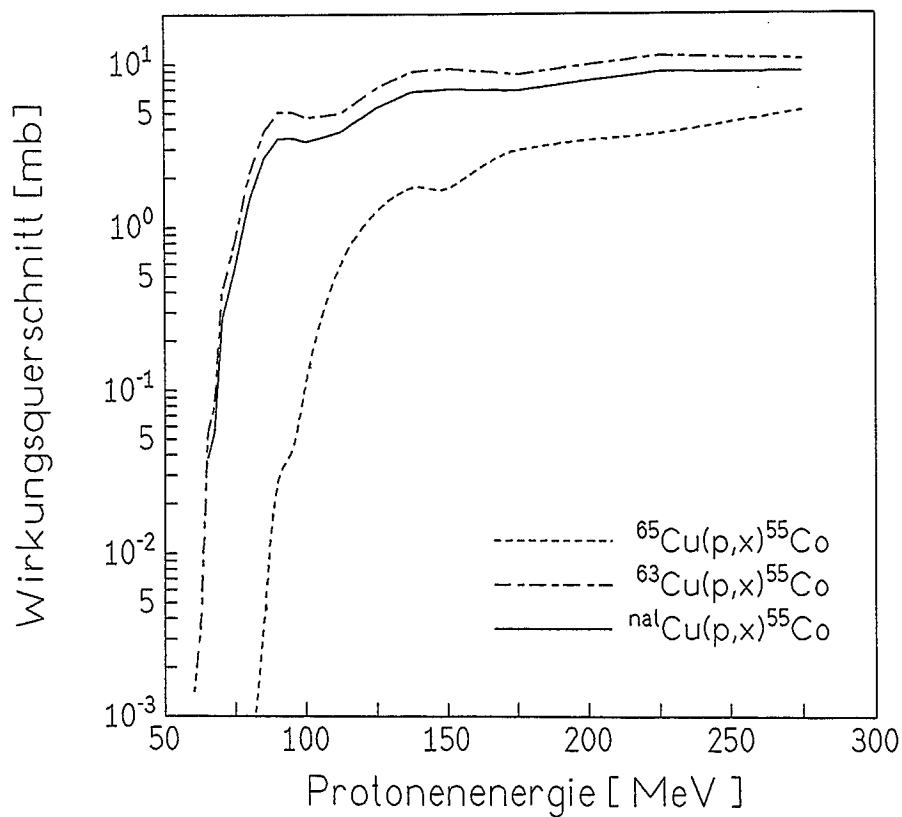


Abb. 4.2: ALICE-Anregungsfunktionen für die Kernreaktionen ^{63}Cu , $^{65}\text{Cu}(p,x)^{55}\text{Co}$ sowie die durch Mittelwertbildung errechnete Funktion für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x)^{55}\text{Co}$

Für Messing wurde auf ähnliche Weise zusätzlich der integrale Wirkungsquerschnitt aus dem Atomzahlverhältnis Cu/Zn berechnet. Abb. 4.2 zeigt exemplarisch die für die Nuklide ^{63}Cu und ^{65}Cu separat berechneten sowie die für das natürliche Isotopengemisch durch Mittelwertbildung für die Zusammensetzung 69,2 m-% ^{63}Cu / 30,8 m-% ^{65}Cu [nach LED 78] (entsprechend einem Atomzahlverhältnis von $n(^{63}\text{Cu})/n(^{65}\text{Cu}) = 0,698/ 0,302$) errechnete Anregungsfunktionen zur Bildung von ^{55}Co .

5. Experimentelle Ergebnisse und Vergleich mit der Theorie

5.1 Wirkungsquerschnitte für (p, ^7Be)-Prozesse

5.1.1 Kohlenstoff

In Tab 5.1 sind die Ergebnisse dieser Arbeit wiedergegeben; Abb 5.1 zeigt die Ergebnisse zusammen mit einer Auswahl an Literaturwerten; die durchgezogene Kurve zeigt den Cubespline-fit nach Akima [AKI 70] für die dargestellten Werte. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit früheren Messungen;

Tab 5.1: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{C}(p, ^7\text{Be})$

E/MeV	$\sigma(^7\text{Be})/\text{mb}$
$354,13 \pm 0,28$	$7,90 \pm 0,79$
$256,10 \pm 0,31$	$8,31 \pm 0,84$
$248,93 \pm 0,33$	$9,10 \pm 0,92$
$216,60 \pm 0,40$	$8,60 \pm 0,87$
$172,80 \pm 0,69$	$12,66 \pm 1,14$
$172,20 \pm 0,69$	$12,20 \pm 1,10$
$162,38 \pm 0,74$	$12,10 \pm 1,09$
$161,87 \pm 0,74$	$12,34 \pm 1,11$
$154,85 \pm 0,75$	$12,50 \pm 1,13$
$146,32 \pm 0,78$	$12,85 \pm 1,16$
$145,52 \pm 0,78$	$12,00 \pm 1,08$

Die $^{\text{nat}}\text{C}(p, ^7\text{Be})$ - Anregungsfunktion ist von der Schwelle bis zu einigen GeV Protonenenergie von verschiedenen Autoren [BAK 58, HON 60, BRU 62a, GAU 62, VAL 63, RAY 64, JUN 68, ALE 90, BOD 93b, SCK 95] sehr gut beschrieben worden (vgl. Abb. 5.1). Das Maximum ($\sim 20\text{mb}$) liegt bei etwa 40 MeV; für Protonenenergien >100 MeV verläuft die Anregungsfunktion nahezu konstant und nimmt Werte um die 10 mb an. Im Rahmen dieser Arbeit wurden einige $^{\text{nat}}\text{C}(p, ^7\text{Be})$ - Wirkungsquerschnitte für den therapierelevanten Protonenenergiebereich ermittelt. Die Werte sind mit früheren Messungen konsistent und schließen einige Lücken im Energie-

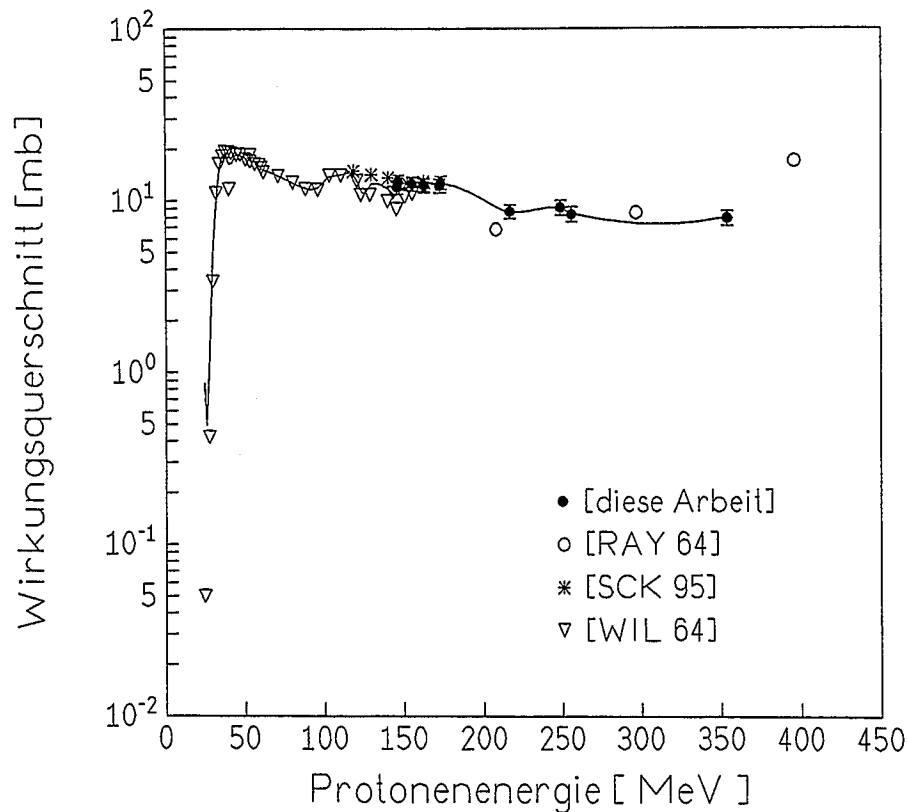


Abb. 5.1: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{nat}\text{C}(p, ^7\text{Be})$ (Akima-Fit eingezeichnet)

bereich 130-250 MeV. Theoretische Berechnungen zu ^7Be -Emissionen waren mit ALICE-IPPE 1996 noch nicht möglich.

5.1.2 Stickstoff

Während der untere Energiebereich ($E_p < 100$ MeV) relativ gründlich untersucht wurde [BIM 71, EPH 71, GOL 78, ALE 90, BOD 93b], sind oberhalb von 100 MeV kaum Ergebnisse publiziert worden [HON 60, REE 65, GEO 62]. Als Targetmaterial eignen sich stabile Nitride, wie z.B. Silicium- [SCK 95] oder Vanadiumnitrid [EPH 71]. In dieser Arbeit wurden Aluminium- und Siliciumnitrid verwendet. Die Ergebnisse sind in Tab. 5.2 zusammengestellt.

Die $^{nat}\text{N}(p, ^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitte lassen sich systematisch gut mit früheren Ergebnissen vergleichen (Abb. 5.2). Die $^{nat}\text{N}(p, ^7\text{Be})$ -Anregungsfunktion (Schwelle bei ~ 7 MeV) besitzt ihren maximalen Wert bei ca. 20 MeV und flacht schnell ab, um ab 40 MeV fast konstant (um 9 mb) zu verlaufen.

Tab 5.2: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $^{nat}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$

E/MeV	$\sigma({}^7\text{Be})/\text{mb}$
352,41 $\pm$ 0,36	8,20 $\pm$ 0,90
255,92 $\pm$ 0,42	6,48 $\pm$ 0,72
247,59 $\pm$ 0,43	6,70 $\pm$ 0,74
216,30 $\pm$ 0,50	7,97 $\pm$ 0,73
171,24 $\pm$ 0,62	9,91 $\pm$ 0,90
167,23 $\pm$ 0,63	10,25 $\pm$ 0,93
163,50 $\pm$ 0,63	10,08 $\pm$ 0,94
159,02 $\pm$ 0,64	8,48 $\pm$ 0,77
155,84 $\pm$ 0,64	10,38 $\pm$ 0,93
150,73 $\pm$ 0,64	9,48 $\pm$ 1,08
140,01 $\pm$ 0,65	8,40 $\pm$ 0,76

Natürlicher Stickstoff besteht aus den beiden Isotopen ^{14}N (99,63 %) und ^{15}N (0,37%). Die Kernreaktionen $^{14}\text{N}, {}^{15}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$ unterscheiden sich aufgrund der außerordentlich hohen Nukleonenbindungsenergie des $^{14}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$ -2 α -Restkerns deutlich in ihren Q-Werten (3.1.1) und damit im Betrag der Reaktionsschwellwertenergie ($^{14}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$: 13, 51 MeV, $^{15}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$: 23,30 MeV), so daß der Prozeß am ^{15}N unterhalb von 23 MeV nahezu vollständig unterdrückt und die Wirkungsquerschnitte für Energien < 23 MeV nur durch $^{14}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$ bestimmt sein sollten. Bei einer Protonenenergie von 23 MeV müßte die Anregungsfunktion ihren Verlauf sprunghaft ändern. Aufgrund des geringen Anteiles an ^{15}N läßt sich dies aber experimentell nicht belegen. Die Ergebnisse dieser Arbeit ergänzen den bereits vorhandenen Datensatz gut für Protonenenergien > 150 MeV; offenbar verläuft die $^{nat}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$ -Anregungsfunktion oberhalb 100 MeV näherungsweise konstant (Abb. 5.2). Auch zur $^{nat}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$ -reaktion waren theoretische Rechnungen nicht möglich.

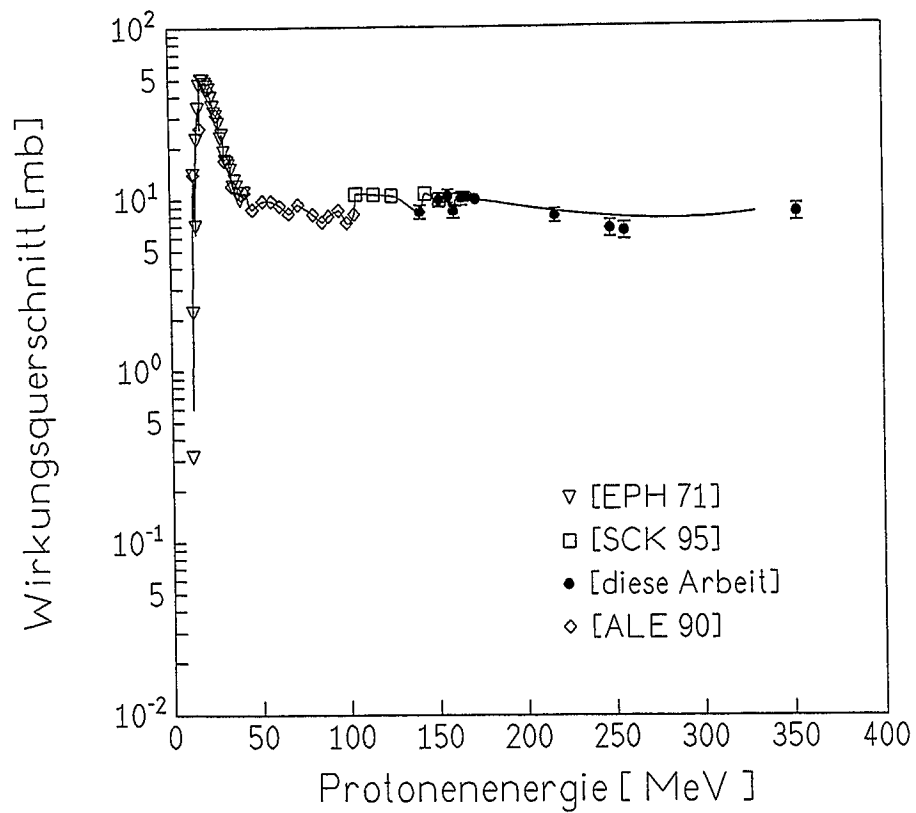


Abb. 5.2: Anregungsfunktion für den Prozeß ${}^{\text{nat}}\text{N}(p, {}^7\text{Be})$ (Akima-Fit eingezeichnet)

5.1.3 Sauerstoff

Tab 5.3: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß ${}^{\text{nat}}\text{O}(p, {}^7\text{Be})$

E/MeV	$\sigma({}^7\text{Be})/\text{mb}$
$354,68 \pm 0,28$	$6,80 \pm 0,76$
$250,23 \pm 0,38$	$6,70 \pm 0,74$
$168,50 \pm 0,51$	$6,02 \pm 0,55$
$159,90 \pm 0,50$	$6,05 \pm 0,55$
$151,60 \pm 0,52$	$5,47 \pm 0,49$
$142,90 \pm 0,77$	$6,00 \pm 0,54$

Durch die Anwesenheit ^7Be -emittierender Bindungspartner in festen Targets (z.B. Oxalsäure [Ben 60], CuO [LAF 66], SiO_2 [SCK 95]) sind die Wirkungsquerschnitte allgemein mit größeren Fehlern behaftet als bei Kohlenstoff. In dieser Arbeit wurden wie bei [SCK 95] durch Bestrahlung von SiO_2 zunächst Summenquerschnitte ermittelt, aus welchen sich durch Subtraktion der $\text{Si}(p, ^7\text{Be})$ -Querschnitte die Werte für Sauerstoff (Tab. 5.3) errechnen ließen. Die hierbei ermittelten sowie die in der Literatur [BEN 60, HON 60, ALB 62, VAL 63, RAY 64, BER 65, REE 65, LAF 66, RAY 68, YIO 69, BIM 71, STA 71, ALE 90, DIT 90, BOD 93b] beschriebenen Daten sind in Abb. 5.3 zusammengefaßt; die Schwelle der $^{\text{nat}}\text{O}(p, ^7\text{Be})$ -Anregungsfunktion liegt bei etwa 35 MeV. Auch hier sind die Ergebnisse im Einklang mit früheren Daten; der durch Rayudu et al. [RAY 64] aufgezeigte Trend wird bestätigt (Abb. 5.3).

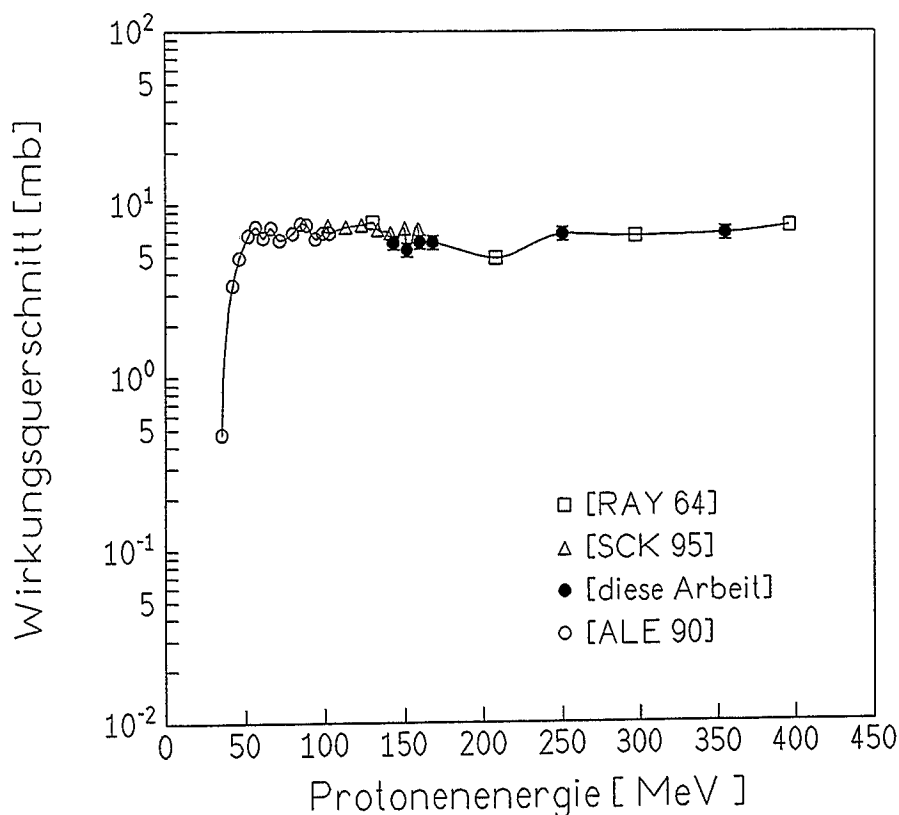


Abb. 5.3: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{O}(p, ^7\text{Be})$ (Akima-Fit eingezeichnet)

5.1.4 Fluor

Der $^{19}\text{F}(\text{p}, ^7\text{Be})$ -Prozeß ist bisher hauptsächlich für Protonenergien $E_p < 100$ MeV untersucht worden [BEN 60, VAL 63, BIM 71, ALE 90]; eine neuere Studie [SCK 95] befaßte sich auch mit höheren Protonenergien. Fluor-Querschnitte (Tab. 5.4) wurde in dieser Arbeit aus den durch ein Polynom 5. Grades interpolierten Summenwirkungsquerschnitten für NaF und NaCl, CuCl sowie den gefundenen Einzelquerschnitten für den $^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p}, ^7\text{Be})$ -Prozeß (5.1.12) bestimmt:

$$\sigma(F) = \sigma(\text{NaF}) + \sigma(\text{CuCl}) - \sigma(\text{NaCl}) - \sigma(\text{Cu}) \quad (5.1)$$

In der Literatur ist die Verwendung von Teflonfolie [BEN 60] als Targetmaterial beschrieben; [SCK 95] ermittelte $^{19}\text{F}(\text{p}, ^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitte für den Energiebereich von 15 bis 70 MeV sowie von 225 bis 375 MeV durch Aktivierung von CaF_2 und SrF_2 und Subtraktion der nach Busemann [BUS 94] abgeschätzten Werte für den Ca bzw. Sr($\text{p}, ^7\text{Be})$ -Prozeß. Abb 5.4 zeigt die Ergebnisse dieser Arbeit zusammen mit den Daten aus [SCK 95]. Aufgrund der Zusammensetzung aus mehreren experimentellen Wirkungsquerschnitten ist der Fehler relativ groß (ca. 50%); die gefundenen Werte lassen sich gut in die Lücke der früher bestimmten Anregungsfunktion einordnen.

Tab 5.4: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $^{19}\text{F}(\text{p}, ^7\text{Be})$

E/MeV	$\sigma(^7\text{Be})/\text{mb}$
$168,68 \pm 0,59$	$3,97 \pm 1,47$
$148,71 \pm 0,65$	$3,13 \pm 1,15$
$136,41 \pm 0,68$	$3,33 \pm 1,23$
$128,02 \pm 0,82$	$3,42 \pm 1,27$
$123,25 \pm 0,80$	$3,59 \pm 1,33$
$119,67 \pm 0,74$	$3,73 \pm 1,38$
$110,63 \pm 0,79$	$3,60 \pm 1,33$
$106,78 \pm 0,81$	$3,65 \pm 1,35$

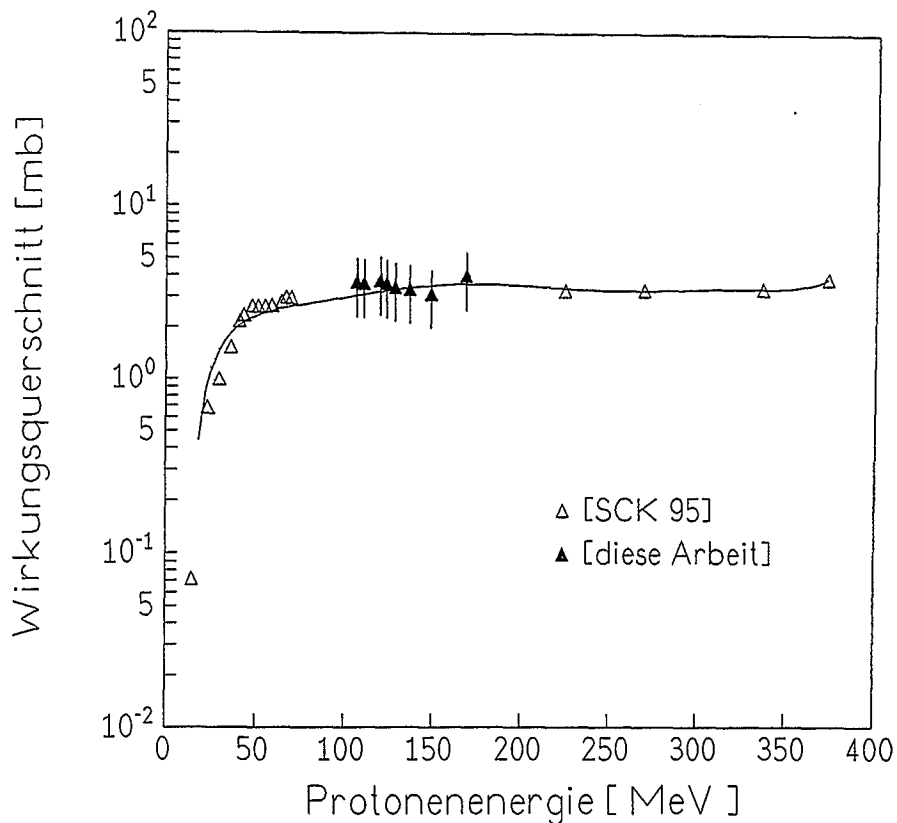


Abb. 5.4: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{19}\text{F}(p,^7\text{Be})$ mit einem Polynomfit 5. Grades

5.1.5 Natrium

Natrium als Targetelement ist bislang wenig untersucht worden [BEN 60, ALE90]. In der vorliegenden Arbeit wurden die Wirkungsquerschnitte für diesen Prozeß durch Bestrahlungen von NaCl, CuCl und Cu ermittelt (Tab. 5.5):

$$\sigma(\text{Na}) = \sigma(\text{NaCl}) + \sigma(\text{Cu}) - \sigma(\text{CuCl}) \quad (5.2)$$

Die totale $(p,^7\text{Be})$ -Anregungsfunktion $\sigma_{\text{tot}}(\text{NaCl})$ verläuft im Energiebereich von 80 bis 180 MeV annähernd linear. In der Annahme eines ähnlichen Verlaufs der $\text{Cl}(p,^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitte in diesem Energiebereich wurde die für die NaCl-Werte ermittelte Regressionsgerade parallelverschoben in die Cl-Daten gelegt und die $\text{Na}(p,^7\text{Be})$ durch Subtraktion der $\text{Cl}(p,^7\text{Be})$ -Geraden von den einzelnen Summenquerschnitten $\sigma_{\text{tot}}(\text{NaCl})$ ermittelt. Die auf diese Weise gewonnenen Daten setzen den Trend früherer Messungen fort (Abb. 5.5).

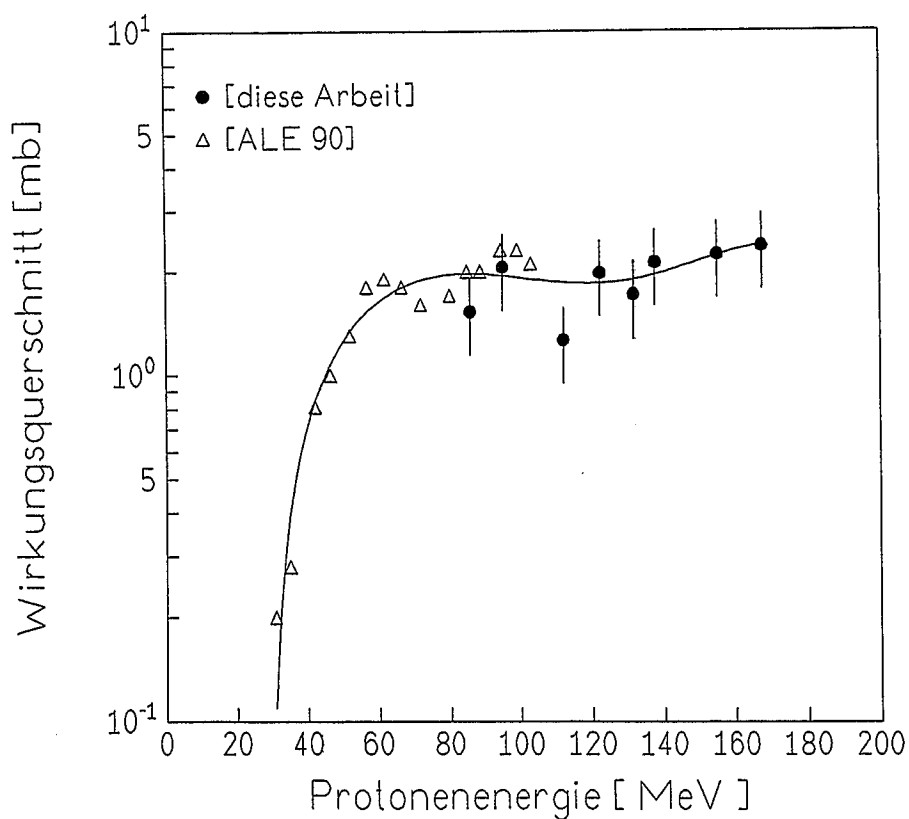


Abb. 5.5: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{23}\text{Na}(p, ^7\text{Be})$ mit einem Polynomfit 5. Grades

Tab 5.5: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $^{23}\text{Na}(p, ^7\text{Be})$

E/MeV	$\sigma(^7\text{Be})/\text{mb}$
$167,46 \pm 0,31$	$2,37 \pm 0,57$
$155,10 \pm 0,33$	$2,24 \pm 0,56$
$137,81 \pm 0,36$	$2,12 \pm 0,54$
$131,77 \pm 0,37$	$1,71 \pm 0,43$
$122,40 \pm 0,37$	$1,97 \pm 0,49$
$112,20 \pm 0,39$	$1,26 \pm 0,32$
$94,90 \pm 0,43$	$2,05 \pm 0,51$
$85,90 \pm 0,45$	$1,53 \pm 0,38$

5.1.6 Aluminium

Die ${}^7\text{Be}$ -Emission bei Al-Kernen ist über einen großen Energiebereich sehr gut bestimmt [MAR 51, HUD 54, BAK 58, BEN 60, NEU 63, LAF 66, BIM 71, CLI 71, POS 71, MIY 73, RAI 74, HEY 76, GRU 82, GRU 82a, ALE 88, DIT 90, SCH 94, SCK 95]. Die Schwelle liegt hier bei etwa 30 MeV; die Funktion verläuft monoton steigend. Die vorliegende Arbeit trägt einige Datenpunkte für den Protonenenergiebereich von 140 bis 180 MeV bei (Tab. 5.6); der Trend früherer Untersuchungen wird fortgesetzt (Abb. 5.6).

Tab 5.6: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß ${}^{27}\text{Al}(p, {}^7\text{Be})$

E/MeV	$\sigma({}^7\text{Be})/\text{mb}$
$256,60 \pm 0,08$	$1,57 \pm 0,15$
$217,19 \pm 0,09$	$1,58 \pm 0,16$
$175,00 \pm 0,13$	$1,18 \pm 0,08$
$165,20 \pm 0,13$	$0,93 \pm 0,07$
$157,00 \pm 0,14$	$0,94 \pm 0,07$
$148,60 \pm 0,15$	$1,10 \pm 0,08$
$140,90 \pm 0,15$	$0,99 \pm 0,07$

5.1.7 Silicium

Auch für den gut untersuchten [RAY 64, RAY 68, BIM 71, RAI 74, LUN 79, BAR 87, ALE 88, DIT 90, SCK 95] ${}^{\text{nat}}\text{Si}(p,x)$ -Prozeß (Schwellwert exp.: ~ 35 MeV, monoton steigend) wurden im Rahmen dieser Arbeit einige Wirkungsquerschnitte durch die Aktivierung von elementarem Silicium ermittelt (Tab. 5.7; Abb. 5.7).

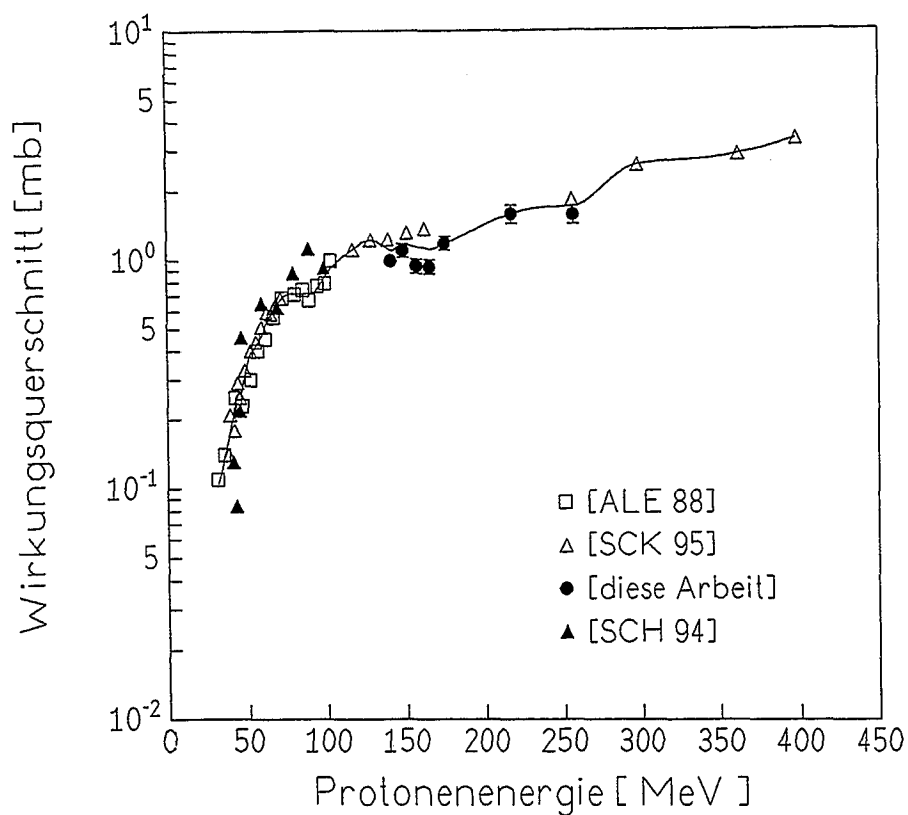


Abb. 5.6: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{27}\text{Al}(p, ^7\text{Be})$ (Akima-Fit eingezeichnet)

Tab 5.7: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{Si}(p, ^7\text{Be})$

E/MeV	$\sigma(^7\text{Be})/\text{mb}$
$355,00 \pm 0,12$	$2,40 \pm 0,20$
$255,00 \pm 0,14$	$1,57 \pm 0,14$
$250,76 \pm 0,15$	$2,41 \pm 0,20$
$215,40 \pm 0,19$	$1,66 \pm 0,15$
$171,00 \pm 0,24$	$1,55 \pm 0,12$
$161,00 \pm 0,25$	$1,42 \pm 0,12$
$152,80 \pm 0,26$	$1,53 \pm 0,11$
$144,20 \pm 0,27$	$1,43 \pm 0,11$

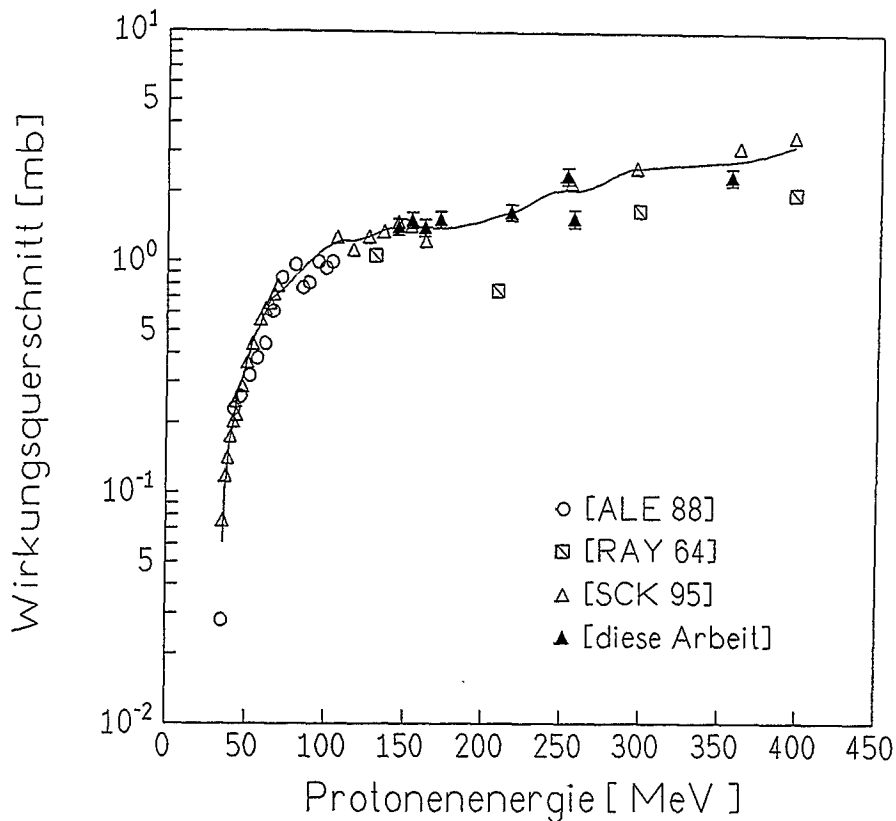


Abb. 5.7: Anregungsfunktion für die Prozeß $^{nat}\text{Si}(p, ^7\text{Be})$ (Akima-Fit eingezeichnet)

5.1.8 Phosphor

Die Bestimmung der ^7Be -Emission aus Phosphorkernen, die bislang nicht untersucht wurde, stellt eine große experimentelle Schwierigkeit dar. Einerseits ist die Bestrahlung von elementarem Phosphor (z.B. in der Modifikation des roten oder metallischen schwarzen Phosphors) aufgrund seiner leichten Flüchtigkeit, der hohen Sauerstoffaffinität und der Umwandlungstendenz $P_{\text{rot}} \rightarrow P_{\text{weiß}}$ bei hohen Temperaturen problematisch. Andererseits gibt es relativ wenige thermisch und strahlenchemisch stabile Verbindungen des Phosphors mit Bildungspartnern, die selbst nur vergleichsweise kleine ^7Be -Emissionswahrscheinlichkeiten besitzen und daher nur wenig zur ^7Be -Summenaktivität, aus der die $^{nat}\text{P}(p, ^7\text{Be})$ -Daten durch Subtraktion erhalten werden, beitragen.

In der vorliegenden Arbeit wurde, in Anlehnung an die guten Ergebnisse bei der Verwendung des analogen Kupfer-I-arsenids (Cu_3As) [BLE 82], das metallische Kupfer-I-phosphid (Cu_3P) als Targetmaterial verwendet, das sich durch relativ hohe thermische und Luftbeständigkeit [GME 30] auszeichnet. Ferner kann Cu_3P gut zu Pellets gepreßt werden. Dennoch zeigte die

Elementaranalyse Verunreinigungen durch Sauerstoff und Stickstoff, die sich aufgrund ihrer hohen $(p, {}^7\text{Be})$ -Querschnitte extrem störend auswirken. Aus diesem Grunde sind die experimentellen ${}^{\text{nat}}\text{P}(p, {}^7\text{Be})$ -Werte, die sich aus dem ${}^7\text{Be}$ -Summenwirkungsquerschnitt nach Abzug der durch Bindungspartner und Verunreinigungen beigetragenen Einzelquerschnitte für N (5.1.2), O (5.1.3) und Cu (5.1.12) zu 1,42 bis 1,76 mb ergaben, sehr unsicher (Tab. 5.8). Bessere Ergebnisse wären bei Herstellung, Transport und Aufarbeitung der Targets unter Inertgas zu erwarten. Die Bestimmung der ${}^7\text{Be}$ -Aktivität erfolgte nach chemischer Abtrennung; die Fehler für die ${}^{\text{nat}}\text{P}(p, {}^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitte betrugen etwa 50%. Emissionsquerschnitte für Protonenenergien < 100 MeV konnten aufgrund des späten Strahltermins des Experiments Upps. 15 im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr bestimmt werden (Abb. 5.8).

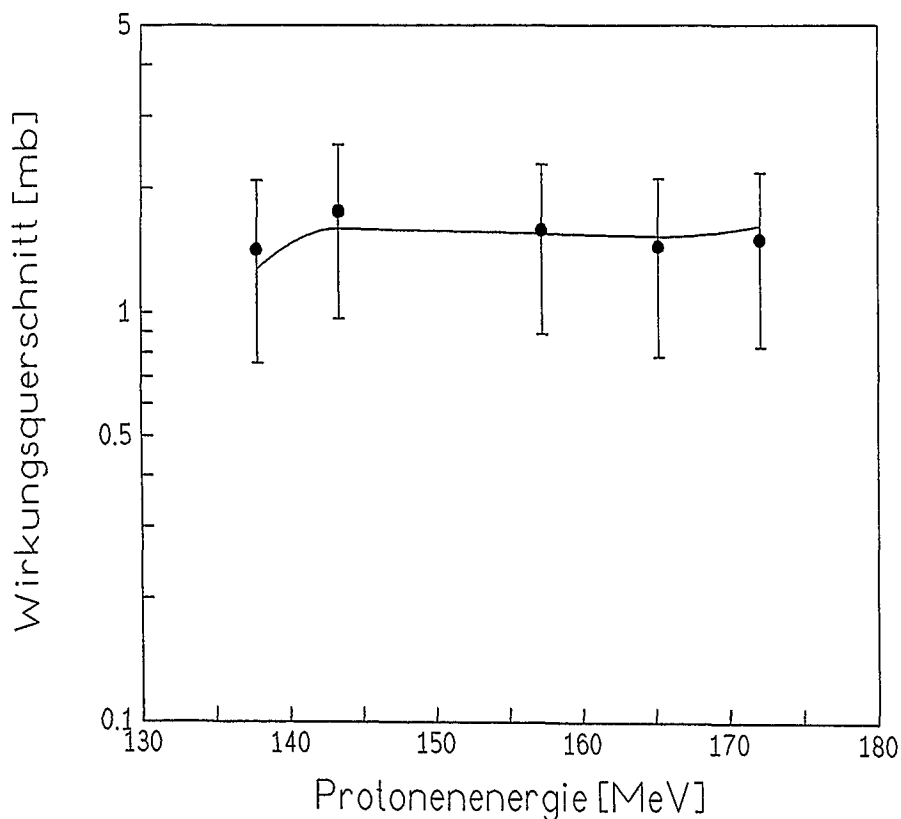


Abb. 5.8: Anregungsfunktion für den Prozeß ${}^{31}\text{P}(p, {}^7\text{Be})$ (Akima-Fit eingezeichnet)

5.1.9 Schwefel

Auch für den $^{nat}\text{S}(p, ^7\text{Be})$ -Prozeß gibt es keine Literaturdaten. Um die ^7Be -Emission aus Schwefel zu untersuchen, wurden zunächst Preßlinge aus Kupfer-II-sulfid (CuS) bestrahlt, die jedoch schon bei Protonenströmen um 50 nA zu sublimieren begannen. Besser geeignet war Kupfer-I-sulfid (Cu_2S), das jedoch schon bei der Anlieferung einen relativ hohen Sauerstoffgehalt aufwies (Tab. 3.1.2). Auch für die Bestimmung von ^7Be in aktiviertem Cu_2S mußte Be von der durch $\text{Cu}(p,x)$ -Prozesse erzeugten Matrixaktivität chemisch abgetrennt werden (Kap. 3.6.5). Numerische Daten sind in Tabelle 5.8 wiedergegeben.

5.1.10 Chlor

Die Untersuchung von Chlor gelang unter Verwendung von Kupfer-I-chlorid-Targets und Protonen-Strahlströmen $I_p < 80$ nA. Die $(p, ^7\text{Be})$ -Beiträge durch Chlorkerne (Tab. 5.8) ergaben sich nach Abzug der additiven Wirkungsquerschnitte für N (Kap. 5.1.2), O (Kap. 5.1.3), und Cu (Kap. 5.1.12) zu 1,02 bis 1,47 mb. Die Ergebnisse für den $^{nat}\text{Cl}(p,x)$ -Prozeß dienten wiederum zur Berechnung der Chlorbeiträge bei NaCl-Aktivierungen (Kap. 5.1.5).

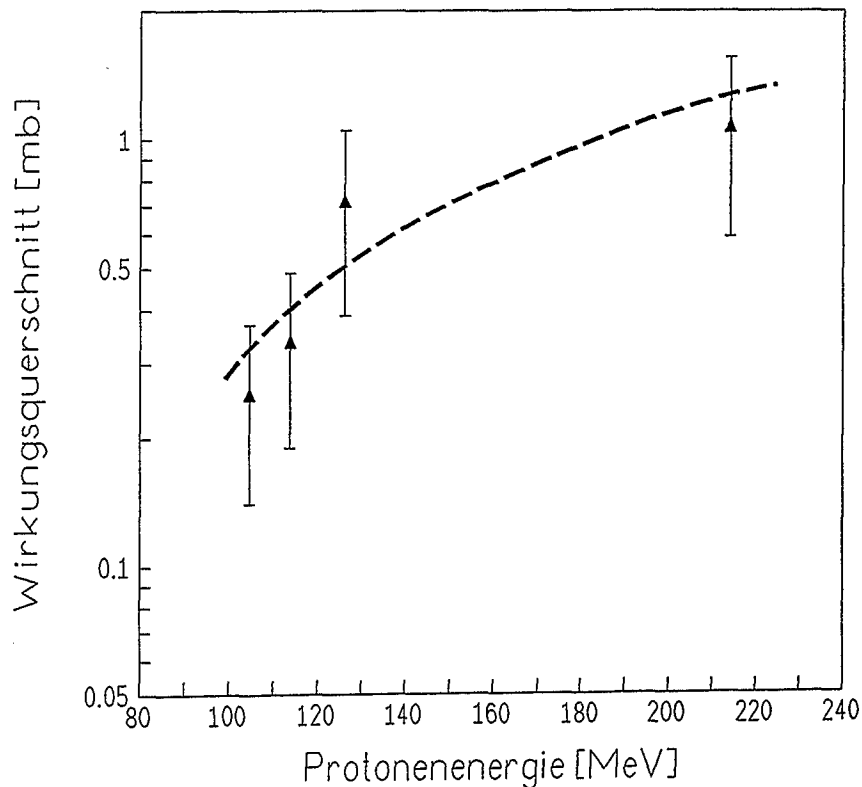


Abb. 5.9: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{nat}\text{S}(p, ^7\text{Be})$ (mit Hilfslinie)

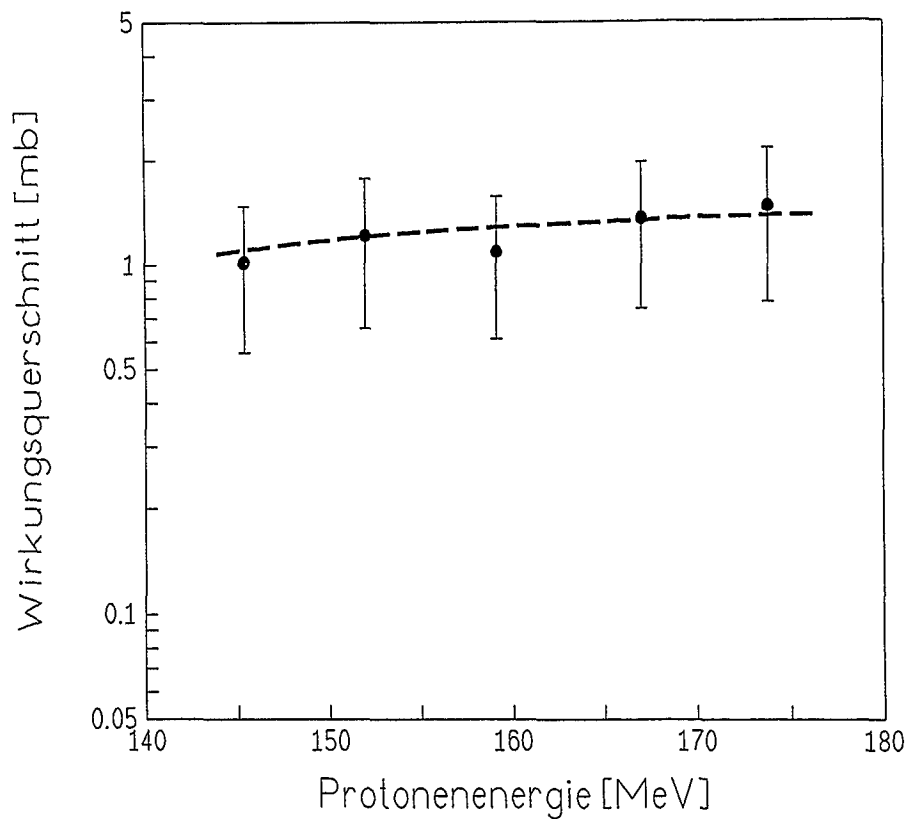


Abb. 5.10: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{Cl}(p, ^7\text{Be})$ (mit Hilfslinie)

5.1.11 Calcium

Auch $^{\text{nat}}\text{Ca}(p, ^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitte sind in der Literatur nicht beschrieben. Diese wurden in der vorliegenden Arbeit aus den Werten für Chlor (Kap. 5.1.10) und den Summenquerschnitten für NaCl, NaF, CaF_2 ermittelt (Tab. 5.8):

$$\sigma(\text{Ca}) = \sigma(\text{CaF}_2) + 2 \cdot [\sigma(\text{NaCl}) - \sigma(\text{NaF}) - \sigma(\text{Cl})] \quad (5.3)$$

Die Werte sind mit einem Fehler von etwa 60% behaftet (Abb. 5.11).

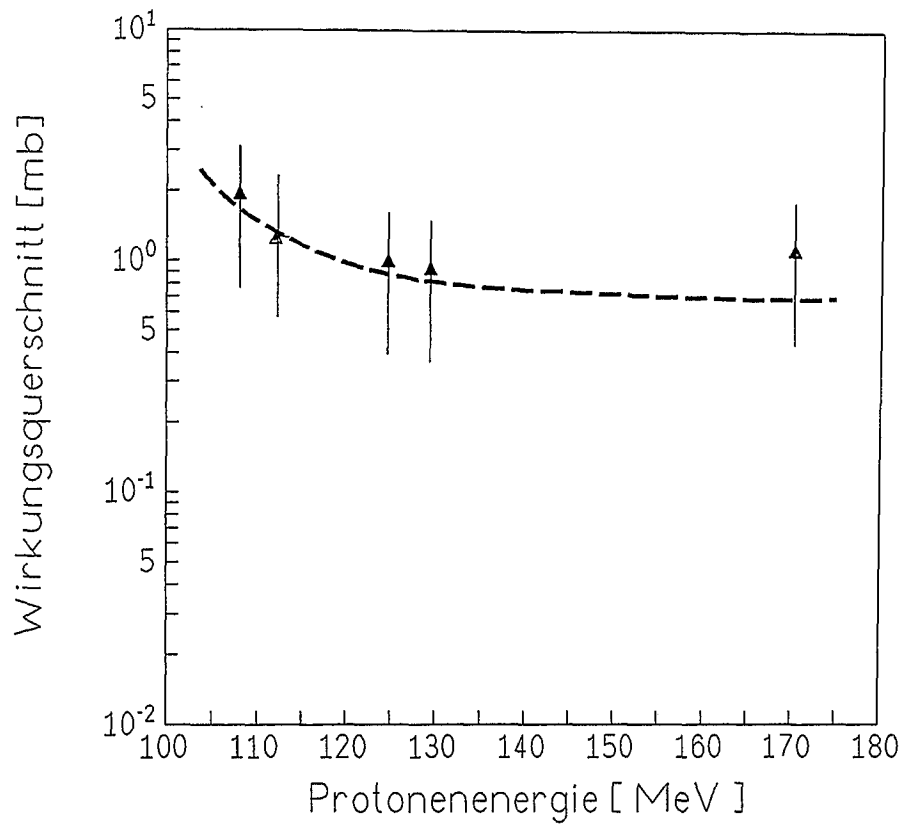


Abb. 5.11: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{nat}\text{Ca}(p,^7\text{Be})$ (mit Hilfslinie)

Tab 5.8: Wirkungsquerschnitte für (p, ^7Be)- Prozesse an ^{31}P , $^{\text{nat}}\text{S}$, $^{\text{nat}}\text{Cl}$ und $^{\text{nat}}\text{Ca}$

E/MeV	$\sigma(^7\text{Be})/\text{mb}$			
	^{31}P	$^{\text{nat}}\text{S}$	$^{\text{nat}}\text{Cl}$	$^{\text{nat}}\text{Ca}$
214,14 $\pm$ 0,37		1,04 $\pm$ 0,47		
173,83 $\pm$ 0,20			1,47 $\pm$ 0,66	
172,13 $\pm$ 0,20	1,50 $\pm$ 0,65			
170,27 $\pm$ 0,68				1,13 $\pm$ 0,69
167,04 $\pm$ 0,21			1,36 $\pm$ 0,62	
165,29 $\pm$ 0,21	1,45 $\pm$ 0,62			
159,12 $\pm$ 0,22			1,09 $\pm$ 0,48	
157,32 $\pm$ 0,21	1,59 $\pm$ 0,68			
151,95 $\pm$ 0,22			1,21 $\pm$ 0,55	
145,33 $\pm$ 0,23			1,02 $\pm$ 0,48	
143,43 $\pm$ 0,23	1,76 $\pm$ 0,76			
137,85 $\pm$ 0,23	1,42 $\pm$ 0,61			
129,30 $\pm$ 0,80				0,94 $\pm$ 0,57
124,60 $\pm$ 0,80				1,01 $\pm$ 0,62
126,10 $\pm$ 0,49		0,72 $\pm$ 0,33		
113,66 $\pm$ 0,53		0,34 $\pm$ 0,15		
112,02 $\pm$ 0,90				1,27 $\pm$ 0,77
108,18 $\pm$ 0,90				1,96 $\pm$ 1,20
104,59 $\pm$ 0,56		0,26 $\pm$ 0,11		

5.1.12 Eisen

Für den $^{\text{nat}}\text{Fe}(p, ^7\text{Be})$ -Prozeß sind in der Literatur lediglich fünf Meßpunkte im Energiebereich von 80 MeV bis 300 MeV angegeben [LAF 66, RAY 68]. Weitere Wirkungsquerschnitte sind für Protonenenergien > 400 MeV beschrieben [RAY 68, ORT 76, DIT 90]. In dieser Arbeit wurden Werte für den Energiebereich von 80 bis 360 MeV bestimmt (Tab. 5.9); obwohl sie etwas größer sind als die von [LAF 66] und [RAY 64] angegebenen Querschnitte für vergleichbare Energien,

wird der Trend der verfügbaren Literaturdaten bestätigt (Abb. 5.12). Zur Bestimmung der ^7Be -Aktivität durch γ -Spektrometrie war eine chemische Be-Abtrennung (Kap. 3.6.4) erforderlich.

Tab 5.9: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{Fe}(p, ^7\text{Be})$

E/MeV	$\sigma(^7\text{Be})/\text{mb}$
$352,76 \pm 0,02$	$0,81 \pm 0,13$
$247,90 \pm 0,03$	$0,64 \pm 0,10$
$173,17 \pm 0,05$	$0,29 \pm 0,05$
$169,80 \pm 0,37$	$0,27 \pm 0,05$
$165,40 \pm 0,38$	$0,30 \pm 0,06$
$154,00 \pm 0,40$	$0,26 \pm 0,05$
$149,70 \pm 0,40$	$0,29 \pm 0,05$
$143,70 \pm 0,42$	$0,30 \pm 0,05$
$137,70 \pm 0,04$	$0,29 \pm 0,05$
$112,96 \pm 0,05$	$0,24 \pm 0,04$
$108,81 \pm 0,05$	$0,25 \pm 0,04$
$96,08 \pm 0,05$	$0,22 \pm 0,04$
$86,65 \pm 0,05$	$0,23 \pm 0,04$

5.1.13 Kupfer

Auch der $(p, ^7\text{Be})$ -Prozeß an natürlichem Kupfer ist, wohl aufgrund der Erfordernis chromatographischer Abtrennungstechniken, wenig untersucht. Unterhalb 100 MeV sind zwei [LAF 66], oberhalb 300 MeV bis 4 GeV 12 [GRE 51, FRI 54, BAK 58, HUD 63, CUM 74, ORT 76, DIT 90] Messungen beschrieben. Auch bei der Untersuchung von bestrahltem Cu muß ^7Be von den zahlreichen gebildeten Nebengruppenmetallaktivitäten abgetrennt werden. In der Literatur [BAK 58] wird die Fällung als $[^7\text{Be}]\text{Be}(\text{OH})_2$, die Feinreinigung durch $[\text{BeCl}_4]^{2-}$ -Ionenaustausch an DOWEX A-1 und anschließende $\text{Fe}(\text{OH})_3$ -Scavenger-Fällung mit nachfolgender Acetylaceton-Extraktion des ^7Be beschrieben. Auch hier lassen sich die Ergebnisse dieser Arbeit gut mit früheren Messungen vergleichen (Tab. 5.10, Abb. 5.13).

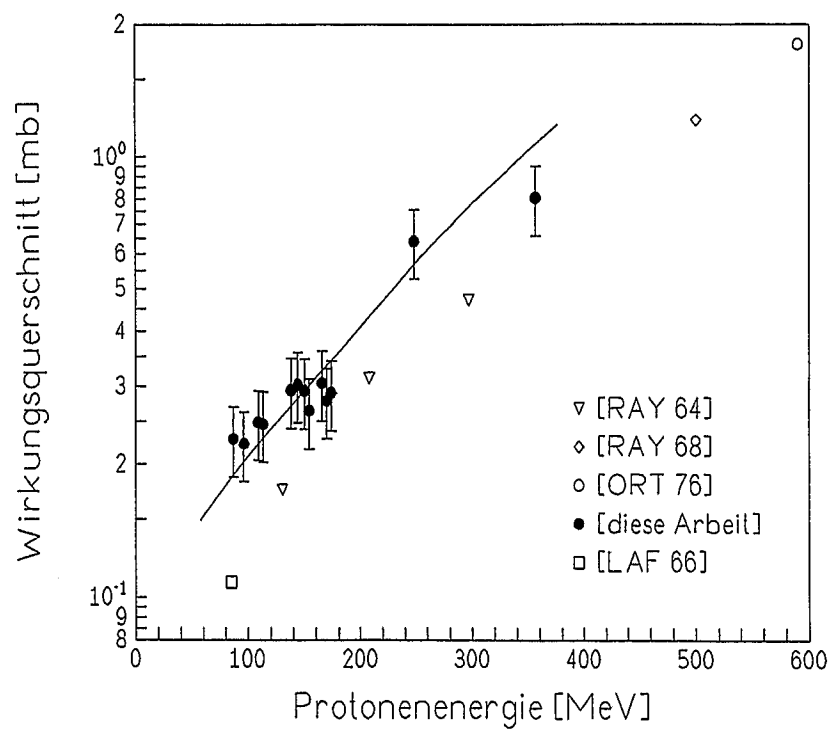


Abb. 5.12: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{Fe}(p, ^7\text{Be})$ (mit Hilfslinie)

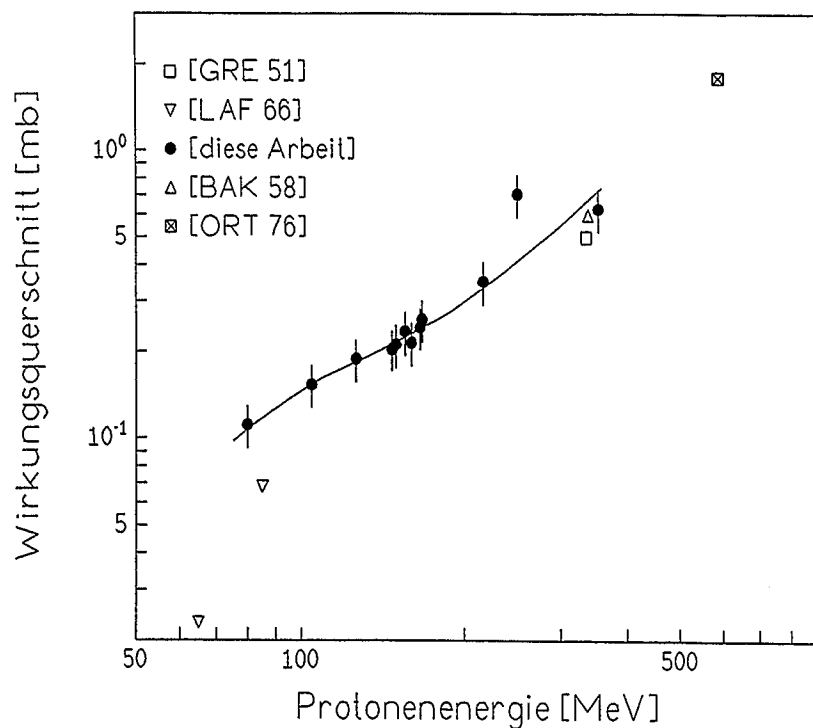


Abb. 5.13: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{Cu}(p, ^7\text{Be})$ (mit Hilfslinie)

5.1.14 Zink

Für den $^{nat}\text{Zn}(p, {}^7\text{Be})$ -Prozeß gibt es keine Literaturdaten. Um die ${}^7\text{Be}$ -Aktivität zu bestimmen, war wiederum eine chemische Abtrennung von der Matrixaktivität erforderlich. Die chemische Trennung erfolgte analog der Cu- Abtrennung (siehe Kap. 3.6.5). Es wurden exemplarisch für die Energien 133,94 MeV und 254,34 MeV zwei Meßpunkte bestimmt (Tab. 5.10), die einen nahezu konstanten Verlauf der Anregungsfunktion im Bereich von 120-300 MeV vermuten lassen. Danach sind die $^{nat}\text{Zn}(p, {}^7\text{Be})$ -Querschnitte unterhalb 300 MeV Energie kleiner als die entsprechenden Cu-Werte (Kap. 5.1.13).

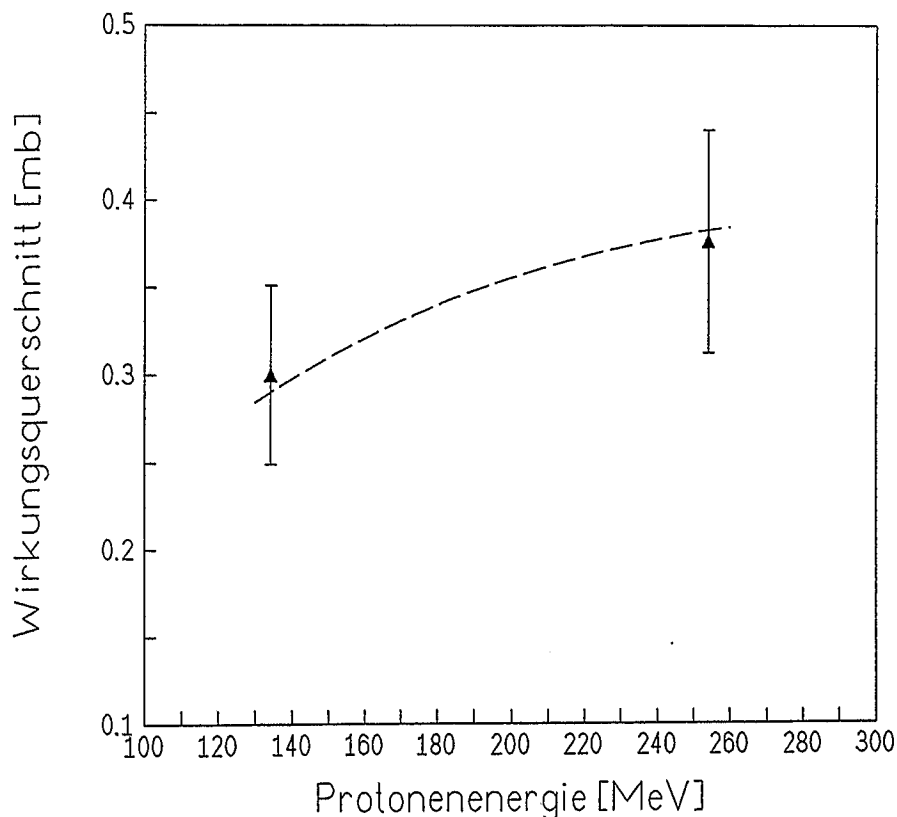


Abb 5.14: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $^{nat}\text{Zn}(p, {}^7\text{Be})$ (mit Hilfslinie)

5.1.15 Messing

Zur Abschätzung der ${}^7\text{Be}$ -Bildung in bestrahlten Kollimatormaterialien wurde für einige Protonenenergien die ${}^7\text{Be}$ -Emission aus Messingfolien (63 Massen-% Cu / 37 Massen-% Zn) untersucht. Die chemische Aufarbeitung der bestrahlten Folien erfolgte wie bei Cu und Zn (Kap. 3.6.5). Numerische Daten sind in Tab 5.10 enthalten; Abb. 5.14 zeigt die integralen experimentel-

len Ergebnisse gemeinsam mit integrierten Daten, die aus den $(p, {}^7\text{Be})$ -Querschnitten für Cu und Zn für Messing der Teilchenzahl-Zusammensetzung entsprechend $n(\text{Cu})/n(\text{Zn}) = 0,64 / 0,36$ berechnet wurden.

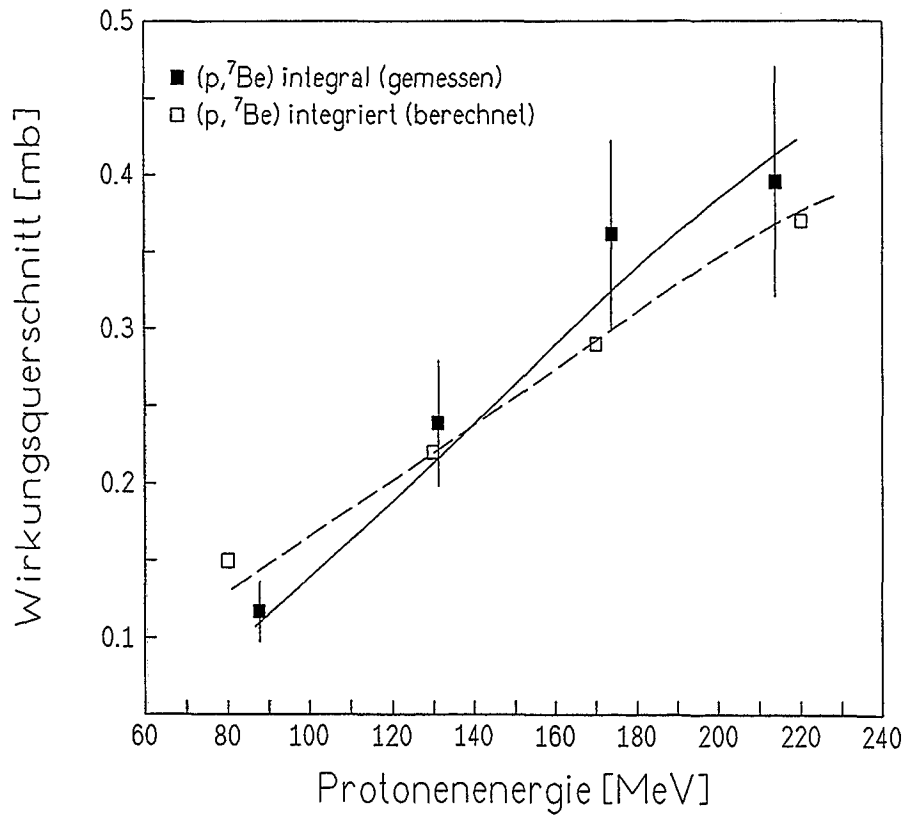


Abb. 5.14: Integrale und integrierte Anregungsfunktion für die ${}^{\text{nat}}\text{Cu}$, ${}^{\text{nat}}\text{Zn}$ ($p, {}^7\text{Be}$) Prozesse in (63 m-% Cu/37m-% Zn)-Messing (mit Hilfslinien)

Die integralen und integrierten Daten zeigen eine recht gute Übereinstimmung innerhalb des experimentellen Fehlerintervalls von etwa 20 %.

Tab 5.10: Wirkungsquerschnitte für (p, ^7Be)- Prozesse an $^{\text{nat}}\text{Cu}$, Messing und $^{\text{nat}}\text{Zn}$

E/MeV	$^{\text{nat}}\text{Cu}$	Messing	$^{\text{nat}}\text{Zn}$
	(63 m-% Cu, 37 % Zn)		
	$\sigma(^7\text{Be})/\text{mb}$		
355,48 $\pm$ 0,10	0,629 $\pm$ 0,107		
254,30 $\pm$ 0,11			0,376 $\pm$ 0,064
251,38 $\pm$ 0,12	0,707 $\pm$ 0,121		
214,40 $\pm$ 0,13	0,351 $\pm$ 0,060		
214,00 $\pm$ 0,14		0,396 $\pm$ 0,075	
173,88 $\pm$ 0,15		0,361 $\pm$ 0,058	
167,80 $\pm$ 0,15	0,259 $\pm$ 0,044		
166,30 $\pm$ 0,15	0,243 $\pm$ 0,040		
160,20 $\pm$ 0,16	0,215 $\pm$ 0,037		
155,90 $\pm$ 0,16	0,235 $\pm$ 0,041		
149,80 $\pm$ 0,17	0,212 $\pm$ 0,036		
147,40 $\pm$ 0,17	0,204 $\pm$ 0,033		
134,00 $\pm$ 0,07			0,300 $\pm$ 0,049
131,30 $\pm$ 0,17		0,239 $\pm$ 0,038	
126,50 $\pm$ 0,19	0,188 $\pm$ 0,032		
104,70 $\pm$ 0,21	0,154 $\pm$ 0,026		
87,85 $\pm$ 0,16		0,117 $\pm$ 0,019	
79,90 $\pm$ 0,27	0,111 $\pm$ 0,019		

5.2 Wirkungsquerschnitte für die Bildung von ^{22}Na und ^{24}Na

Bei protoneninduzierten Prozessen an Elementen mit einer Ordnungszahl > 11 werden bei Energien > 100 MeV die Natriumisotope ^{22}Na ($t_{1/2} = 2,6$ a) und ^{24}Na ($t_{1/2} = 14,96$ h) gebildet. Die Tabellen 5.2 und 5.3 geben die Q-Werte für die im Hinblick auf die Protonentherapie relevanten Kernreaktionen in Gewebe und Gerätematerial wieder.

Tab. 5.11: Energiebilanz der (p,x) ^{22}Na - Reaktionen in Gewebe und Gerätematerial für die häufigsten Isotope

Nuklid	Häufigkeit [%]	(p,x) ^{22}Na Q-Wert [MeV]	Coulomb- barriere [MeV]	Schwellen- energie * [MeV]
^{23}Na	100,0	1,21	3,98	3,19
^{31}P	100,0	-24,57	4,91	30,28
^{32}S	95,02	-24,12	5,19	30,13
^{33}S	0,75	-14,11	5,13	19,67
^{34}S	4,21	-20,58	5,08	26,27
^{35}Cl	75,77	-19,40	5,35	25,30
^{37}Cl	24,23	-24,97	5,25	30,89
^{40}Ca	96,94	-24,13	6,02	24,73
^{42}Ca	0,65	-20,34	5,92	20,82
^{44}Ca	2,09	-23,84	5,83	25,53
^{54}Fe	5,80	-17,19	7,08	24,38
^{56}Fe	91,70	-19,29	4,22	23,85
^{57}Fe	2,20	-17,04	6,95	24,29
^{58}Fe	0,30	-22,77	6,91	23,85
^{63}Cu	69,17	-18,08	7,50	25,87
^{65}Cu	30,83	-18,98	7,42	26,70

* Aufgrund des Tunneleffekts ist eine Reaktion bereits bei niedrigeren Energien wahrscheinlich.

Tab. 5.12: Energiebilanz der (p,x) ^{24}Na - Reaktionen in Gewebe und Gerätematerial für die häufigsten Isotope

Nuklid	Häufigk. [%]	(p,x) ^{24}Na Q-Wert [MeV]	Coulomb- barriere [MeV]	Schwellen- energie [MeV]
^{31}P	100,0	-31,65	4,91	32,68
^{32}S	95,02	-39,22	5,19	40,45
^{33}S	0,75	-26,58	5,13	27,39
^{34}S	4,21	-24,87	5,08	25,61
^{35}Cl	75,77	-21,86	5,35	10,74
^{37}Cl	24,23	-21,74	5,25	22,32
^{40}Ca	96,94	-35,62	6,02	36,51
^{42}Ca	0,65	-24,58	5,92	25,17
^{44}Ca	2,09	-20,03	5,83	20,49
^{54}Fe	5,80	-21,50	7,08	21,90
^{56}Fe	91,70	-18,31	4,22	18,64
^{57}Fe	2,20	-14,54	6,95	14,80
^{58}Fe	0,30	-17,60	6,91	17,90
^{63}Cu	69,17	-16,34	7,50	16,60
^{65}Cu	30,83	-16,53	7,42	16,79

Bei leichteren Targetkernen werden die Restkerne $^{22,24}\text{Na}$ durch die Emission mehrerer Nukleonen gebildet, während bei schwereren Targetkernen auch die Emission von $^{22,24}\text{Na}$ - Kernen möglich ist. Dies wird unten (Kap. 5.2.3) am Beispiel Si diskutiert. Im folgenden werden die untersuchten Elemente im einzelnen betrachtet.

5.2.1 Natrium

Der Prozeß $^{23}\text{Na}(p,pn)^{22}\text{Na}$ besitzt naturgemäß einen vergleichsweise hohen Wirkungsquerschnitt und ist von der Schwelle (~ 12 MeV) bis etwa 6 GeV untersucht worden [MEA 51, CAR 58, BEN 60, PER 60, GUS 62, CRE 63, VAL 65], wobei die Daten namentlich im Bereich 100-200 MeV sehr widersprüchlich sind. Die in dieser Arbeit ermittelten Daten sind in Tabelle 5.13 aufgeführt; Abb 5.23 zeigt die Ergebnisse zusammen mit der ALICE-Rechnung sowie eine Auswahl von Literaturdaten; es zeigt sich eine beträchtliche Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment, da die Kernreaktion offenbar wenig durch Präcompoundprozesse bestimmt wird.

Tab 5.13: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $^{23}\text{Na}(p,pn)^{22}\text{Na}$

E/MeV	$\sigma(^{22}\text{Na})/\text{mb}$
$167,46 \pm 0,31$	$52,3 \pm 6,3$
$155,10 \pm 0,33$	$51,4 \pm 6,3$
$137,81 \pm 0,36$	$55,3 \pm 6,7$
$131,11 \pm 0,37$	$55,9 \pm 6,8$
$128,02 \pm 0,82$	$57,2 \pm 6,9$
$123,25 \pm 0,80$	$63,2 \pm 7,6$
$119,66 \pm 0,74$	$66,7 \pm 8,1$
$110,63 \pm 0,79$	$65,3 \pm 7,9$
$106,77 \pm 0,81$	$64,7 \pm 7,8$

5.2.2 Aluminium

Die Anregungsfunktionen für die Prozesse $^{27}\text{Al}(p,x)^{22,24}\text{Na}$ sind sehr gut untersucht [^{22}Na : vgl. HIN 52, BAT 54, BEN 60, NGU 61, BRU 62b, GAU 62, CUM 63b, HUD 54, FUR 65, CLI 71, POS 71, HEY 76, MIY 73, WAL 73, WAL 76, GRU 82, ALE 88, LAG 88, DIT 90, STE 90; ^{24}Na : vgl. HIN 52, MAR 52, HUD 54, FRI 55, CRA 56, HIC 56, CUM 58, GOE 61, TAM 61, GAU 62, CUM 63b, CUM 63c, MIY 73, HOL 77, HOG 78, GRU 82a, MIC 85, LAG 88]; die Daten von Steyn et al. [STE 90] sowie Michel et al. [MIC 85] wurden in dieser Arbeit zur Flußbestimmung herangezogen.

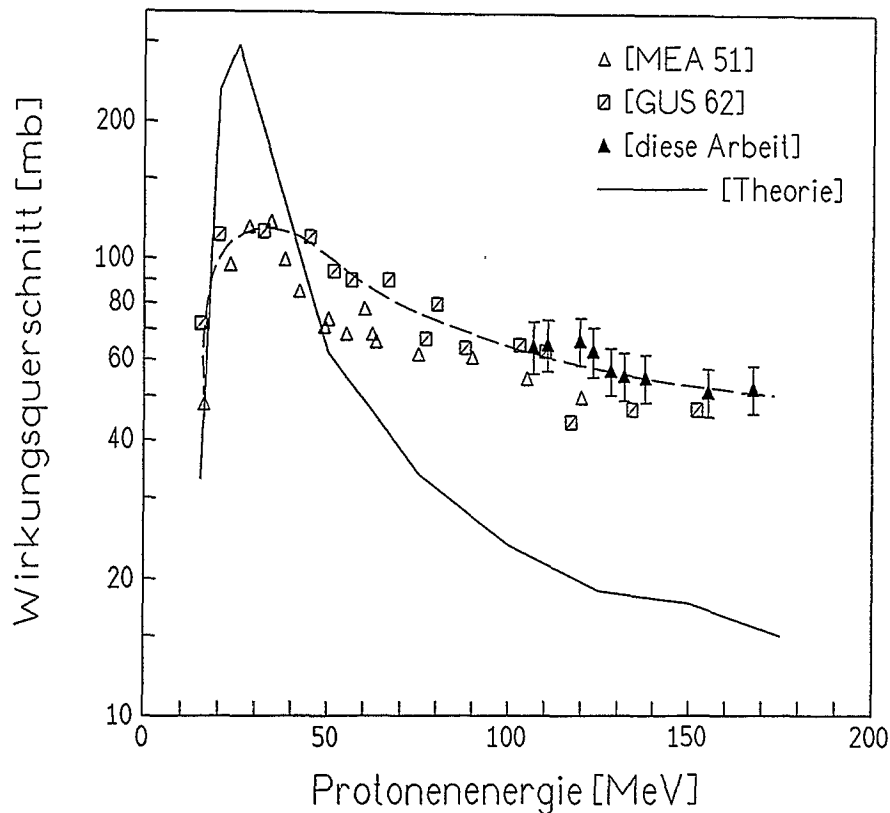


Abb 5.15: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{23}\text{Na}(p,pn)^{22}\text{Na}$ (mit gestrichelter Hilfslinie)

5.2.3 Silicium

Auch die Anregungsfunktionen für die Bildung von $^{22,24}\text{Na}$ aus natürlichem Silicium sind gut bekannt [^{22}Na : RAY 64, KOR 67, RAY 68, SHE 68, KOR 70b, BIM 71, WAL 73, HEY 76, WAL 76, BAR 84, ALE 88, DIT 90; ^{24}Na : RAY 64, KOR 67, RAY 68, SHE 68, KOR 70b, BIM 71, BAR 87, LUN 79, ALE 88, SCK 95], so daß in dieser Arbeit nur wenige Datenpunkte im therapie relevanten Energiebereich ermittelt wurden, die die Ergebnisse früherer Arbeiten bestätigen. Tabelle 5.14 gibt die numerischen Werte wieder; für die Protonenenergien um 250 und 355 MeV konnten im gleichen Experiment mehrere Datenpunkte ermittelt werden. Die Abb. 5.16 zeigt die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zusammen mit neueren Literaturdaten [SCK 95]. Die mit ALICE-IPPE 1996 a priori berechneten Anregungsfunktionen sind als Linien dargestellt; ALICE liefert für den $^{nat}\text{Si}(p,x)^{22}\text{Na}$ -Prozeß oberhalb 70 MeV um den Faktor 2 zu große Querschnitte, während die $(p,x)^{24}\text{Na}$ -Querschnitte oberhalb 125 MeV 1,5-2-fach unterschätzt werden.

Die Bildung von ^{24}Na und ^{22}Na aus natürlichem Si (92,23% ^{28}Si , 4,76% ^{29}Si , 3,10% ^{30}Si) ist durch verschiedene Prozesse möglich (Tab. 5.15).

Tab 5.14: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{nat}\text{Si}(p,x)^{22,24}\text{Na}$

E/MeV	$\sigma(^{22}\text{Na})/\text{mb}$	$\sigma(^{24}\text{Na})/\text{mb}$
$355,00 \pm 0,12$	$13,40 \pm 1,47$	$3,93 \pm 0,43$
$354,50 \pm 0,12$	$15,00 \pm 1,65$	$4,00 \pm 0,44$
$353,10 \pm 0,12$	$17,37 \pm 1,91$	$4,24 \pm 0,47$
$250,90 \pm 0,15$	$14,60 \pm 1,61$	$3,99 \pm 0,45$
$250,50 \pm 0,15$	$14,10 \pm 1,55$	$3,90 \pm 0,44$
$172,20 \pm 0,24$	$17,28 \pm 1,90$	
$166,40 \pm 0,55$	$16,55 \pm 1,82$	
$165,60 \pm 0,24$	$16,98 \pm 1,87$	$3,77 \pm 0,41$
$157,70 \pm 0,25$	$16,61 \pm 1,83$	
$139,30 \pm 0,75$	$17,00 \pm 1,87$	$3,54 \pm 0,39$
$138,20 \pm 0,28$	$16,67 \pm 1,83$	$3,48 \pm 0,37$

Tab. 5.15: Mögliche Prozesse zur Bildung von ^{22}Na und ^7Be aus natürlichem Si

	Reaktion	Restkern	Q-Wert	Schwellwert
(A)	$^{28}\text{Si}(p, ^7\text{Be})$	^{22}Na	-24,8	29,5
(B)	$^{28}\text{Si}(p, 4p3n)$	^{22}Na	-62,4	68,1
(C)	$^{28}\text{Si}(p, \alpha 2pn)$	^{22}Na	-34,1	39,1
(D)	$^{28}\text{Si}(p, \alpha p d)$	^{22}Na	-31,9	36,9
(E)	$^{28}\text{Si}(p, \alpha ^3\text{He})$	^{22}Na	-26,4	31,2
(F)	$^{29}\text{Si}(p, ^7\text{Be})$	^{23}Na	-20,8	25,3
(G)	$^{29}\text{Si}(p, 2\alpha)$	^{22}Na	-14,3	18,6
(H)	$^{29}\text{Si}(p, 4p4n)$	^{22}Na	-70,9	77,1
(I)	$^{30}\text{Si}(p, ^7\text{Be})$	^{24}Na	-24,5	29,1

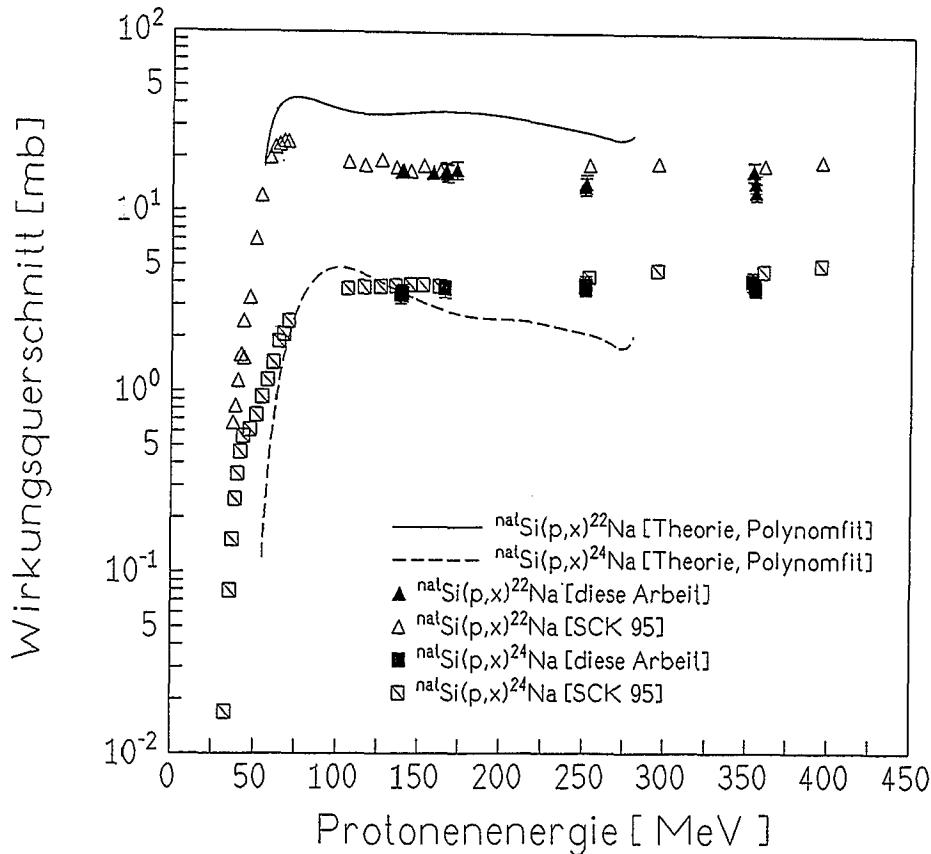


Abb. 5.16: Theoretische und experimentelle Anregungsfunktionen für die Prozesse $^{nat}\text{Si}(p,x)^{22,24}\text{Na}$

Der Schwellwert für die Emission einzelner Nukleonen zur Bildung von ^{22}Na aus ^{28}Si (B) liegt bei ~ 70 MeV; ferner ist die Emission eines weiteren Komplettteilchens nach einer α -Emission sehr unwahrscheinlich, so daß im Energiebereich von 29,5 bis 36,9 MeV die konkurrierenden Prozesse (A), (C), und (D) zum Restkern ^{22}Na führen. Unterhalb von ca. 37 MeV sollte ^{22}Na demnach mit großer Häufigkeit aus dem Prozeß (A) hervorgehen. Unter der Annahme, daß sich die $(p,^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitte für alle Si-Isotope nicht wesentlich unterscheiden, sollte für den Protonenenergiebereich 29,5 - 36,9 MeV annähernd $\sigma(p,^7\text{Be}) \approx \sigma(p,x)^{22}\text{Na}$ gelten, da die Isotopenhäufigkeit von ^{28}Si sehr viel größer ist als die der beiden anderen Isotope, die auch zum $\sigma(p,^7\text{Be})$ beitragen. Tatsächlich liegen die experimentellen Werte in der Umgebung der $^{28}\text{Si}(p,\alpha p d)$ -Reaktionsschwelle (36,9 MeV) in der $\sigma(p,^7\text{Be})$ -Größenordnung; oberhalb ~ 37 MeV steigt $\sigma(p,x)^{22}\text{Na}$ sehr viel schneller an als $\sigma(p,^7\text{Be})$ (Abb. 5.17), was auf die zunehmende Wahrscheinlichkeit der Prozesse (C) und (D) schließen läßt.

Der Wirkungsquerschnitt für die Summe aller $^{nat}\text{Si}(p,x)^{24}\text{Na}$ -Prozesse ist etwa um einen Faktor 10 kleiner als der für die ^{22}Na -Bildung. ^{24}Na wird nur mit geringer Häufigkeit aus ^{28}Si gebildet; viel wahrscheinlicher sind im mittleren Energiebereich neben $^{30}\text{Si}(p,^7\text{Be})^{24}\text{Na}$ die Prozesse

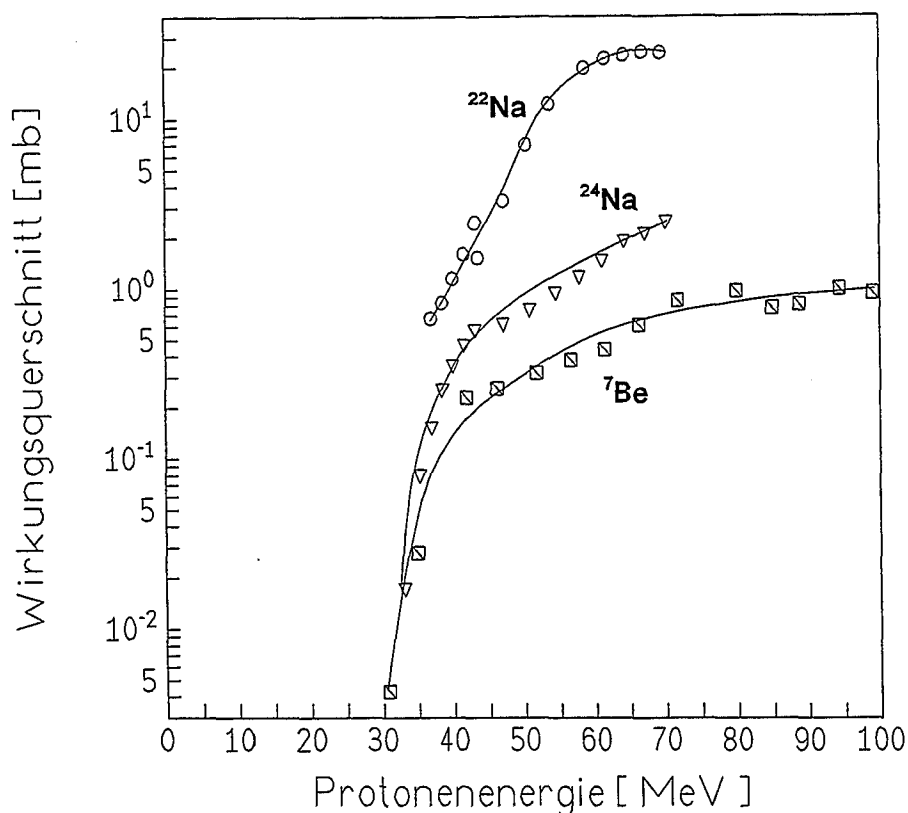


Abb. 5.17 : Anregungsfunktionen für die Prozesse $^{nat}\text{Si}(p,x)^{22,24}\text{Na}$, ^7Be (mit Hilfslinien)

$^{29}\text{Si}(p,\alpha 2p)$ sowie $^{30}\text{Si}(p,\alpha pd+2p2n)$, die oberhalb ~ 40 MeV in summa häufiger stattfinden als $(p,^7\text{Be})$.

5.2.4 Phosphor, Schwefel und Chlor

Die Bildung von Natriumisotopen aus Phosphor wurde bisher nur wenig untersucht [KOR 67, KOR 70b, LUN 79]. Die Wahl des Targetmaterials ist wenig problematisch, da Bindungspartner aus der 2. Periode keine zusätzlichen Aktivitäten erzeugen. Bei dem in dieser Arbeit gewählten Kupfer-I-phosphid trägt Kupfer nur unwesentlich zur $^{22,24}\text{Na}$ -Produktion bei (Kap. 5.2.6). In einer anderen Studie [KOR 70b] wurden Pellets aus einem Gemisch aus 80% Borsäure H_3BO_3 und 20% Kaliumdihydrogenphosphat KH_2PO_4 bestrahlt. Tab. 5.16. gibt die Ergebnisse dieser Arbeit wieder; in den Abb. 5.18 bis 5.23 sind diese jeweils gemeinsam mit Literaturdaten und ALICE-Rechnungen dargestellt; man erkennt, daß die Produktion von ^{24}Na stets besser durch die Theorie beschrieben wird als die von ^{22}Na .

Tab 5.16: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse (p,x) $^{22,24}\text{Na}$ an ^{31}P und $^{\text{nat}}\text{S}$

E/MeV	^{31}P		$^{\text{nat}}\text{S}$	
	$\sigma(^{22}\text{Na})/\text{mb}$	$\sigma(^{24}\text{Na})/\text{mb}$	$\sigma(^{22}\text{Na})/\text{mb}$	$\sigma(^{24}\text{Na})/\text{mb}$
247,40 ± 0,33			5,93 ± 1,19	1,99 ± 0,40
245,50 ± 0,33	13,98 ± 2,09	3,90 ± 0,58		
202,50 ± 0,37		4,98 ± 0,74		
200,94 ± 0,37	9,00 ± 4,94			
175,15 ± 0,28			2,78 ± 0,33	1,05 ± 0,12
168,30 ± 0,28			2,93 ± 0,35	0,83 ± 0,10
167,40 ± 0,41		6,90 ± 0,83		
160,40 ± 0,30			2,69 ± 0,32	0,94 ± 0,11
159,50 ± 0,43	6,75 ± 0,74	7,10 ± 0,85		
153,60 ± 0,30			3,22 ± 0,38	0,90 ± 0,11
152,50 ± 0,44	6,93 ± 0,83			
147,00 ± 0,31			3,23 ± 0,39	0,85 ± 0,10
145,90 ± 0,45	6,39 ± 1,28	6,20 ± 0,74		
141,50 ± 0,32			2,99 ± 0,35	0,76 ± 0,09
137,90 ± 0,46	7,05 ± 0,84	6,82 ± 0,82		
120,00 ± 0,50		4,26 ± 0,51		
114,25 ± 0,57	6,10 ± 0,73			
109,60 ± 0,55		4,78 ± 0,57		
99,20 ± 0,57		4,11 ± 0,49		
99,00 ± 0,57		4,34 ± 0,52		
87,00 ± 0,60			4,69 ± 0,62	
85,15 ± 0,55	4,93 ± 0,65	3,41 ± 0,44		
79,70 ± 0,60			4,28 ± 0,56	0,33 ± 0,04
77,80 ± 0,64	5,59 ± 0,74	1,59 ± 0,20		
61,70 ± 0,80				0,12 ± 0,02
59,32 ± 0,78	4,93 ± 0,65	0,79 ± 0,10		
46,90 ± 1,00			0,27 ± 0,04	0,018 ± 0,002

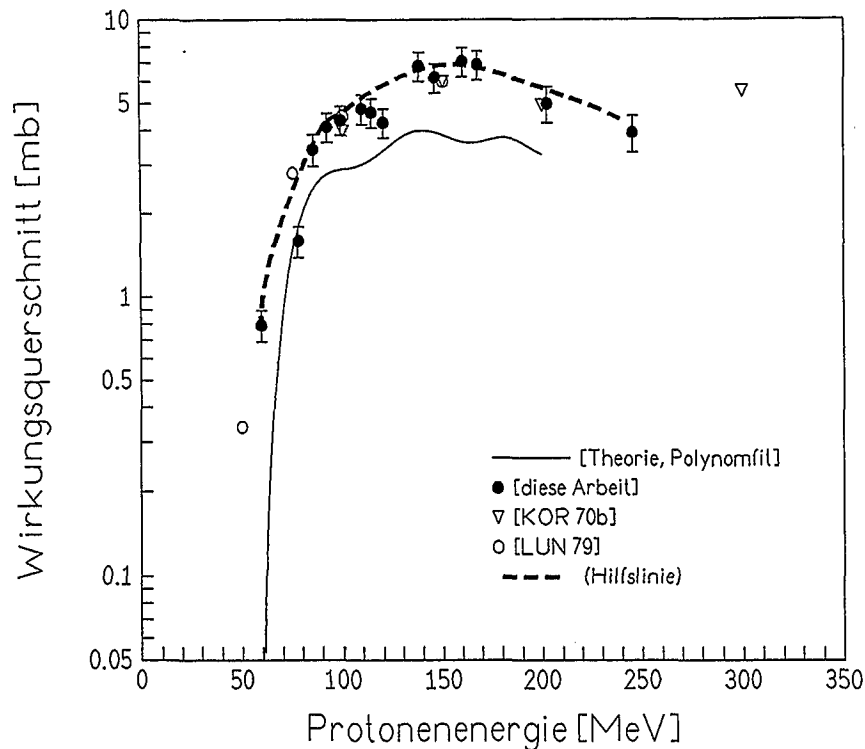


Abb. 5.18: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{31}\text{P}(p,x)^{24}\text{Na}$

Während die Ergebnisse für die $^{31}\text{P}(p,x)^{22}\text{Na}$ -Querschnitte im Energiebereich 120-160 MeV mit [KOR 70 b] im Einklang sind, liegt der Punkt bei 245,5 MeV über dem Literaturwert (Abb. 5.19).

Die $^{31}\text{P}(p,x)^{24}\text{Na}$ - Anregungsfunktion scheint bei etwa 160 MeV ein Maximum um etwa 7 mb zu besitzen, was weder durch die Theorie noch durch frühere Experimente [LUN 79, KOR 70b] widerlegt wird (Tab. 5.16, Abb. 5.18).

Auch die natriumbildenden Reaktionen an Schwefel und Chlor (^{32}S bzw. $^{35}\text{Cl}(p,x)^{22,24}\text{Na}$) sind untersucht worden [KOR 67, KOR 70 b, LUN 79]. Korteling [KOR 70b] setzte Gemische aus Borsäure und den Ammoniumsalzen $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ bzw. NH_4Cl ein, wobei jedoch die Flüchtigkeit dieser Salze bei Einwirkung mittlerer Strahlströme nicht berücksichtigt wurde. In den Abb. 5.20-5.23 sind die jeweiligen Anregungsfunktionen für die Bildung von ^{22}Na und ^{24}Na wiedergegeben. Die Ergebnisse dieser Arbeit (siehe Tab. 5.16 und Tab. 5.17) decken sich, mit Ausnahme der Werte für Schwefel, die unterhalb den Literaturdaten liegen, im wesentlichen mit den früheren Veröffentlichungen.

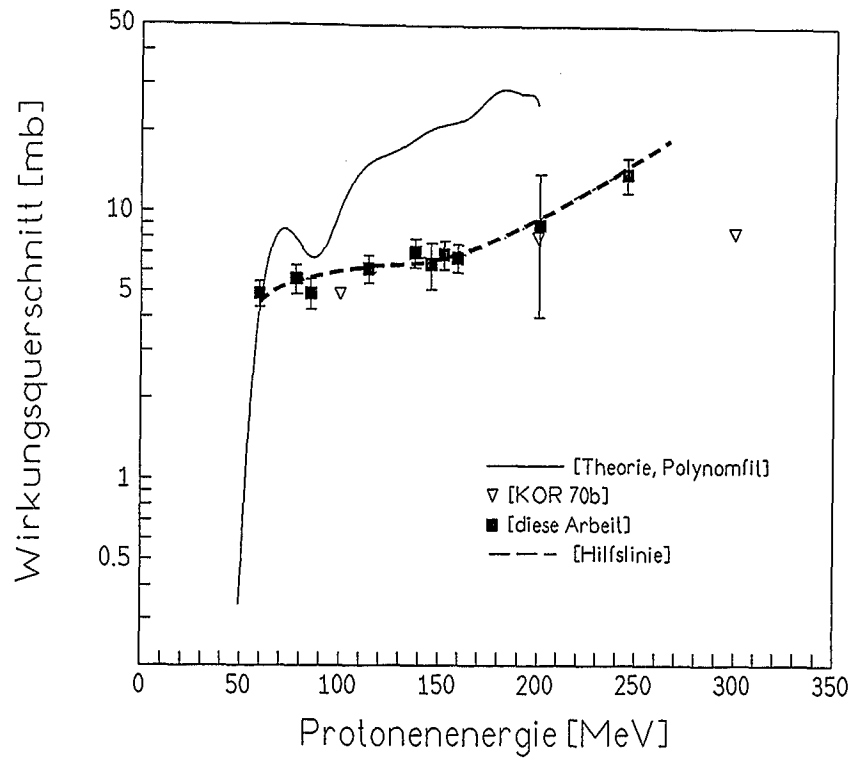


Abb. 5.19: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{31}\text{P}(p,x)^{22}\text{Na}$

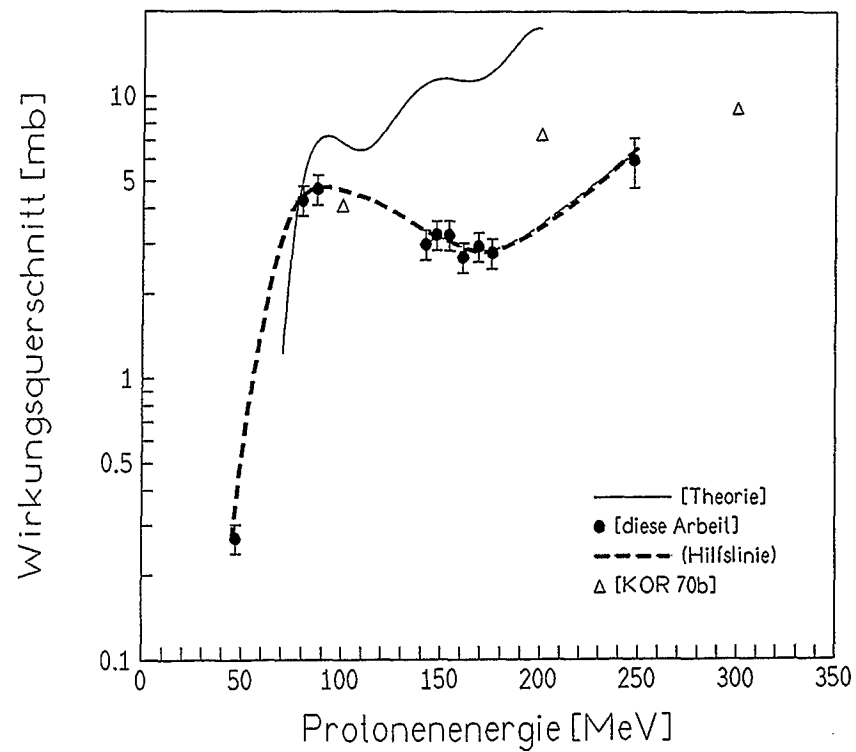


Abb 5.20: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{S}(p,x)^{22}\text{Na}$

Tab 5.17: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse (p,x) $^{22,24}\text{Na}$ an $^{\text{nat}}\text{Cl}$ und $^{\text{nat}}\text{Ca}$

E/MeV	$^{\text{nat}}\text{Cl}$		$^{\text{nat}}\text{Ca}$	
	$\sigma(^{22}\text{Na})/\text{mb}$	$\sigma(^{24}\text{Na})/\text{mb}$	$\sigma(^{22}\text{Na})/\text{mb}$	$\sigma(^{24}\text{Na})/\text{mb}$
246,60 $\pm$ 0,33	4,36 $\pm$ 0,83			
203,70 $\pm$ 0,37		2,22 $\pm$ 0,39		
176,00 $\pm$ 0,41	2,32 $\pm$ 0,44	1,95 $\pm$ 0,33		
170,27 $\pm$ 0,69			0,445 $\pm$ 0,049	0,258 $\pm$ 0,030
169,20 $\pm$ 0,41	2,15 $\pm$ 0,41	1,71 $\pm$ 0,29		
161,30 $\pm$ 0,43	2,18 $\pm$ 0,41	1,79 $\pm$ 0,30		
154,40 $\pm$ 0,44	2,13 $\pm$ 0,40	1,53 $\pm$ 0,26		
150,44 $\pm$ 0,74			0,316 $\pm$ 0,035	0,199 $\pm$ 0,023
148,00 $\pm$ 0,45		1,53 $\pm$ 0,26		
142,50 $\pm$ 0,46	2,25 $\pm$ 0,43	1,28 $\pm$ 0,21		
129,30 $\pm$ 0,82			0,393 $\pm$ 0,043	0,121 $\pm$ 0,014
124,60 $\pm$ 0,84			0,325 $\pm$ 0,036	0,108 $\pm$ 0,013
122,40 $\pm$ 0,52		1,41 $\pm$ 0,23		
120,99 $\pm$ 0,86			0,305 $\pm$ 0,033	0,092 $\pm$ 0,011
115,60 $\pm$ 0,55	1,74 $\pm$ 0,33	1,26 $\pm$ 0,21		
112,20 $\pm$ 0,56		1,37 $\pm$ 0,23		
112,02 $\pm$ 0,90			0,259 $\pm$ 0,028	0,066 $\pm$ 0,008
111,00 $\pm$ 0,58	1,60 $\pm$ 0,30			
108,18 $\pm$ 0,93			0,266 $\pm$ 0,029	0,052 $\pm$ 0,006
100,70 $\pm$ 0,57	1,33 $\pm$ 0,25	1,09 $\pm$ 0,18		
93,60 $\pm$ 0,59	1,34 $\pm$ 0,25			
88,90 $\pm$ 0,55		0,46 $\pm$ 0,06		
81,71 $\pm$ 0,58	0,61 $\pm$ 0,08	0,30 $\pm$ 0,04		
64,01 $\pm$ 0,79	0,24 $\pm$ 0,03	0,002 $\pm$ 0,0005		

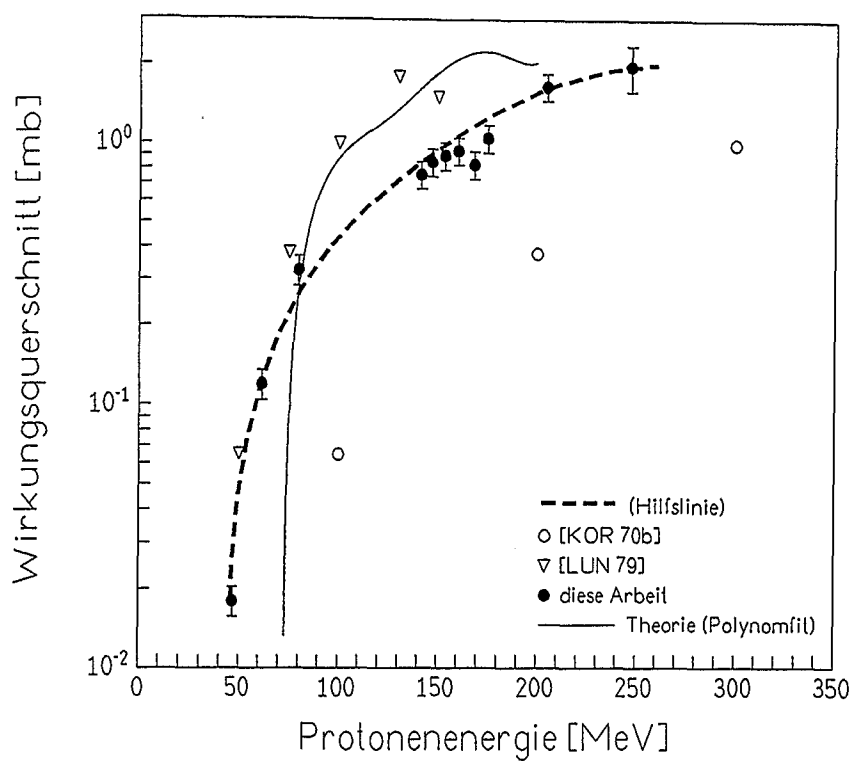


Abb 5.21: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{nat}\text{S}(p,x)^{24}\text{Na}$

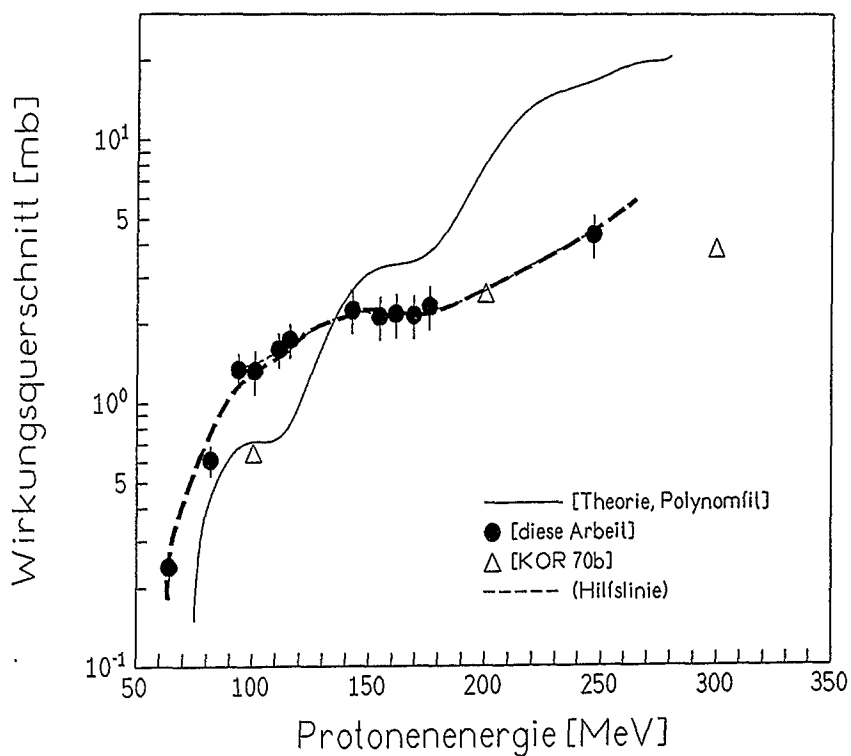


Abb 5.22: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{nat}\text{Cl}(p,x)^{22}\text{Na}$

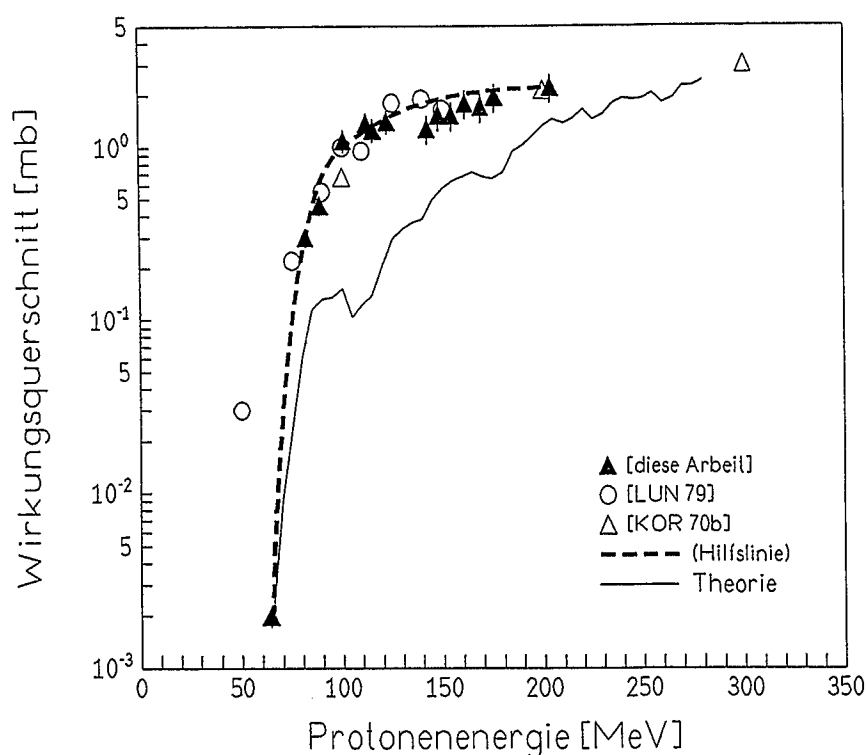


Abb 5.23: Anregungsfunktion für den Prozeß $^{nat}\text{Cl}(p,x)^{24}\text{Na}$

5.2.5 Calcium

^{22}Na - und ^{24}Na -Emissionen aus natürlichem Calcium wurden für einige höhere Protonenenergien untersucht ([KOR 67, KOR 70b, DIT 90]). Die Ergebnisse dieser Arbeit für den Energiebereich 100-180 MeV schließen sich dem Trend früherer Daten gut an. (Tab. 5.17, Abb. 5.24). Theoretische Anregungsfunktionen können für Ca nicht berechnet werden, da der Massenunterschied Ca-Na für die ALICE-Rechnung bereits zu groß ist.

5.2.6 Eisen und Kupfer

Natriumkernemissionen aus Eisen [POR 64, KOR 67, RAY 68, KOR 70b, BRO 71, CLI 71, ORT 76, DIT 90] und Kupfer [BAT 51, GRE 51, CAR 58, FRI 54, MIS 55, LAV 57, CRE 63, POR 64, CUM 74, CUM 76, HUD 63, KOR 67, KOR 70b, KOZ 88, ORT 76, HOL 77] wurden untersucht; die Werte der Wirkungsquerschnitte sind für $\text{Fe}(p,x)^{22,24}\text{Na}$ und $\text{Cu}(p,x)^{22,24}\text{Na}$ ähnlich und bewegen sich im Bereich von 0,005 mb (100 MeV) bis 5 mb (29000 MeV). Speziell im Energiebereich 50-300 MeV sind jedoch nur wenige Meßdaten bekannt.

In der Literatur [KOR 67] werden ^{22}Na und ^{24}Na vor der Bestimmung geträgert, störende Aktivitäten durch saure und basische Sulfidfällung chemisch abgetrennt, Na^+ als $[\text{}^{22,24}\text{Na}]\text{NaCl}$ isoliert und zur Bestimmung der chemischen Ausbeute rückgewogen. In dieser Arbeit wurden exemplarisch zwei Datenpunkte für den $\text{}^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})\text{}^{22}\text{Na}$ -Prozeß durch chemische Na-Abtrennung (Kap. 3.2.5) ermittelt; Abb 5.24 gibt die Ergebnisse dieser Arbeit (vgl. Tab. 5.17 und Tab. 5.21), die durch chemische Abtrennung des geträgerten ^{22}Na erhalten wurden, gemeinsam mit Literaturdaten [KOR 70b] wieder. Im Zusammenhang mit den in 5.2.3 beschriebenen Studien an leichten Nichtmetallkernen läßt sich erkennen, daß der Beitrag durch die $\text{}^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})\text{}^{22,24}\text{Na}$ -Prozesse zum (p,x)-Gesamtwirkungsquerschnitt bei Kernreaktionen an Kupferverbindungen nur unwesentlich ist und im Bereich des Fehlers für die Nichtmetallkernquerschnitte liegt.

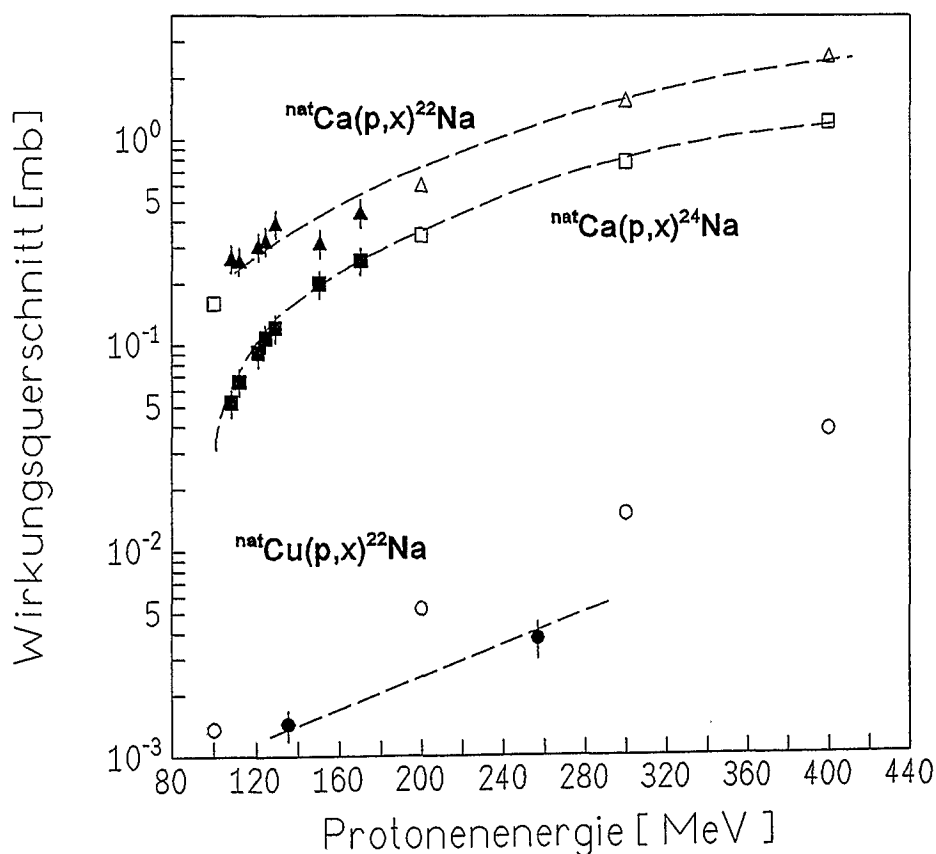


Abb. 5.24: Anregungsfunktion für die Prozesse $\text{}^{\text{nat}}\text{Ca}(\text{p},\text{x})\text{}^{22,24}\text{Na}$ und $\text{}^{\text{nat}}\text{Cu}(\text{p},\text{x})\text{}^{22}\text{Na}$ (mit Hilfslinien); gefüllte Symbole: diese Arbeit, leere Symbole: [KOR 70b]

5.3 Aktivierungsprodukte aus Mittelschweren Elementen

5.3.1 Eisen

Bei der Wechselwirkung von Hochenergie-Protonen mit Eisenkernen werden zahlreiche kurz- und längerlebige Nebengruppenmetallnuklide gebildet. Die meisten $\text{Fe}(p,x)$ -Prozesse sind in niederen Energiebereichen gut untersucht worden, während im Bereich von 100 bis 200 MeV bislang nur relativ wenige Daten existieren [RUD 52, TAN 59, REM 63, HON 64, RAY 64, RAY 68, JEN 70, WAL 73, GAD 74, BAR 75, LAG 75, BRO 71, CLI 71, ORT 76, LAG 79, MIC 79, MIC 80, SCH 79, DYE 81]. Eine neuere Studie liefert auch für den Hochenergie-Bereich ab 100 MeV ausführlichere Daten [SCK 95]. In dieser Arbeit wurden weitere Kernreaktionsdaten für die Bildung von $^{44\text{m}}\text{Sc}$, ^{47}Sc , ^{48}Sc , ^{48}V , ^{48}Cr , ^{51}Cr , ^{52}Fe , ^{55}Co ermittelt. Die Daten sind in den Tabellen 5.18 und 5.19 zusammengefaßt; für alle Produkte wurden ferner ALICE-Modellrechnungen durchgeführt. Die experimentellen Daten (Symbole) und die Ergebnisse der ALICE-Rechnungen für die jeweiligen Reaktionskanäle (Linien) sind in den Abb. 5.25 - 5.27 dargestellt.

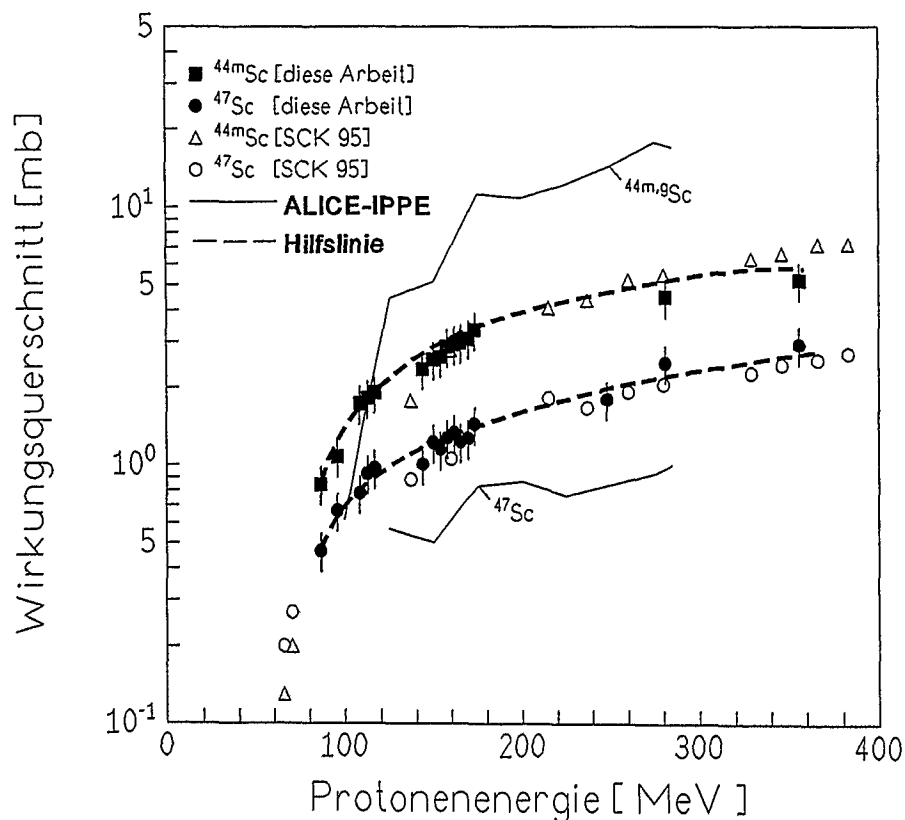


Abb 5.25: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $\text{Fe}(p,x) {}^{44\text{m},47}\text{Sc}$. Dargestellt sind die Ergebnisse dieser Arbeit (Exp: Symbole, Th: Linien) zusammen mit Literaturdaten

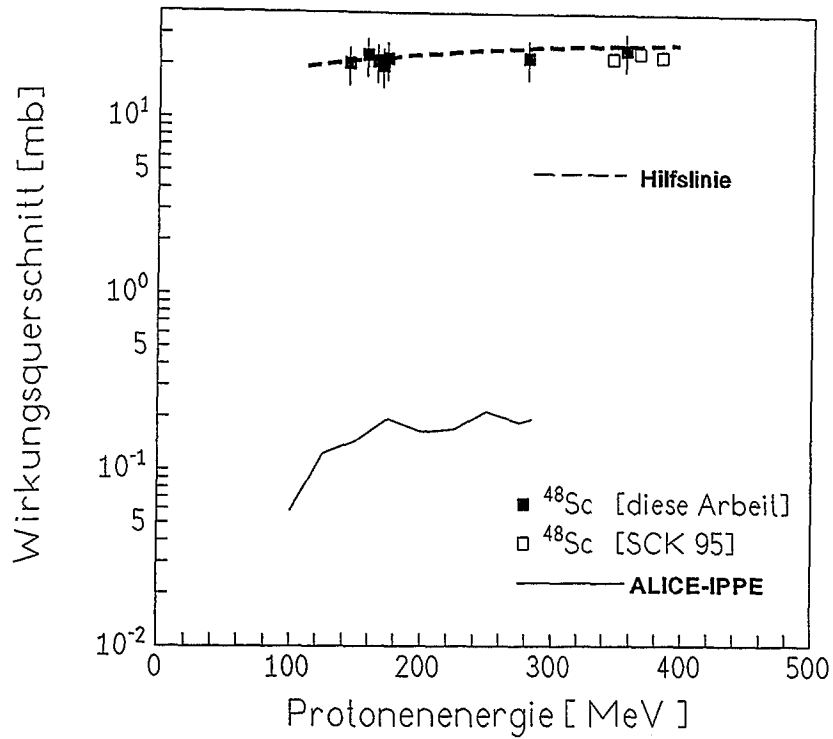


Abb 5.26: Wirkungsquerschnitte für den Prozeß $\text{Fe}(p,x)^{48}\text{Sc}$. Dargestellt sind die Ergebnisse dieser Arbeit (Exp: Symbole, Th: Linien) zusammen mit Literaturdaten

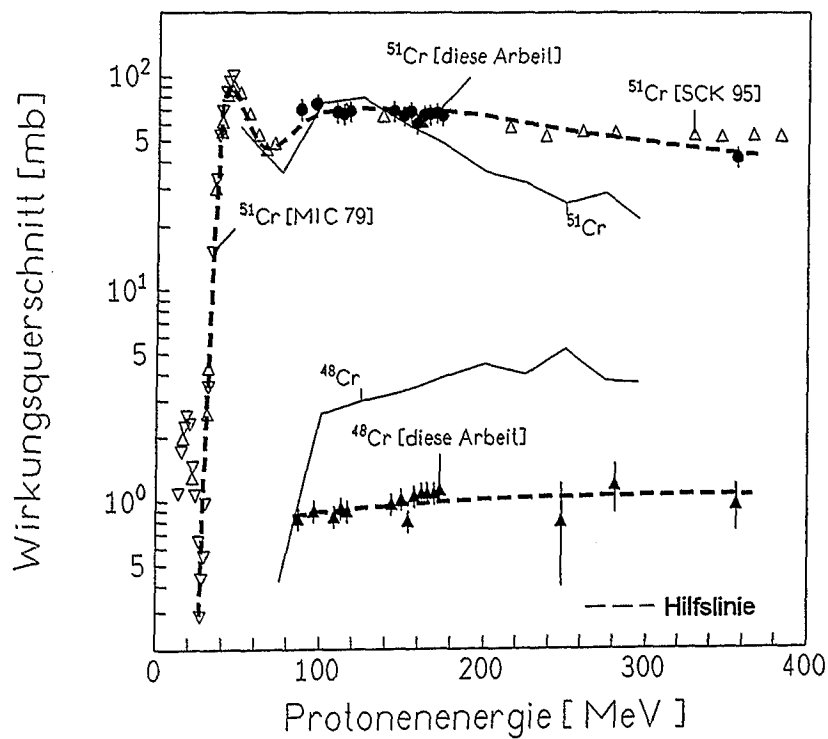


Abb 5.27: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $\text{Fe}(p,x)^{48,51}\text{Cr}$. Dargestellt sind die Ergebnisse dieser Arbeit (Exp: Symbole, Th: Linien) zusammen mit Literaturdaten

Abb 5.25 zeigt die Anregungsfunktionen der Prozesse zur Bildung von Scandiumisotopen ^{44m}Sc (Spin: $6+$) und ^{47}Sc ($7/2-$). Die Funktionen verlaufen einander ähnlich und streng monoton steigend; die experimentellen Schwellwertenergien für die Prozesse $\text{Fe}(p,x)^{44m}\text{Sc}$ und ^{47}Sc liegen bei etwa 62 MeV. Für den ^{48}Sc -Prozeß (Abb. 5.26) lagen keine Literaturdaten bis $E_p=350$ MeV vor; der Wirkungsquerschnitt für die Bildung von ^{48}Sc ($6+$) bleibt in dem betrachteten Energiebereich annähernd konstant.

Für die $\text{Fe}(p,x)^{48}\text{Cr}$ - Reaktion (Abb 5.27) sind keine Literaturdaten dokumentiert; die Anregungsfunktion besitzt einen annähernd konstanten Verlauf. Die $\text{Fe}(p,x)^{51}\text{Cr}$ -Reaktion ist dagegen auch im niederen Energiebereich gut untersucht worden. Die Schwelle liegt bei ca. 25 MeV; die Funktion besitzt ein relatives Maximum bei etwa 50 MeV und verläuft ab 75 MeV näherungsweise konstant.

Die Anregungsfunktionen von $^{\text{nat}}\text{Fe}(p,xn)^{55}\text{Co}$, $^{\text{nat}}\text{Fe}(p,x)^{54}\text{Mn} + ^{56}\text{Fe}(p,pd+^3\text{He})^{54}\text{Mn} + ^{57}\text{Fe}(p,\alpha)^{54}\text{Mn}$ (Schwellen bei etwa 10 MeV) sind in Abb. 5.28 wiedergegeben. Sie steigen zunächst bis 25 MeV bzw. 50 MeV zu einem relativen Maximum an und nehmen zu höheren Energiewerten hin ab.

Abb. 5.29 zeigt die Anregungsfunktion für die Bildung von ^{48}V ; generell zeigt sich eine gute Übereinstimmung der in dieser Arbeit bestimmten $^{\text{nat}}\text{Fe}(p,xn)$ -Wirkungsquerschnitte mit den Daten früherer Studien.

Die theoretisch berechneten Anregungsfunktionen weichen für die Sc-Isotope sowie für ^{48}Cr oberhalb 100 MeV deutlich, im Falle des ^{48}Sc sogar um 2 Größenordnungen im gesamten Energiebereich, von den experimentellen Werten ab; ^{44m}Sc und ^{48}Cr -Bildung werden über-, $^{47,48}\text{Sc}$ -Bildung dagegen unterschätzt. Im Falle von ^{54}Mn , ^{55}Co , ^{48}V werden die empirischen Funktionen in Verlauf und Größenordnung zufriedenstellend durch die Theorie angenähert.

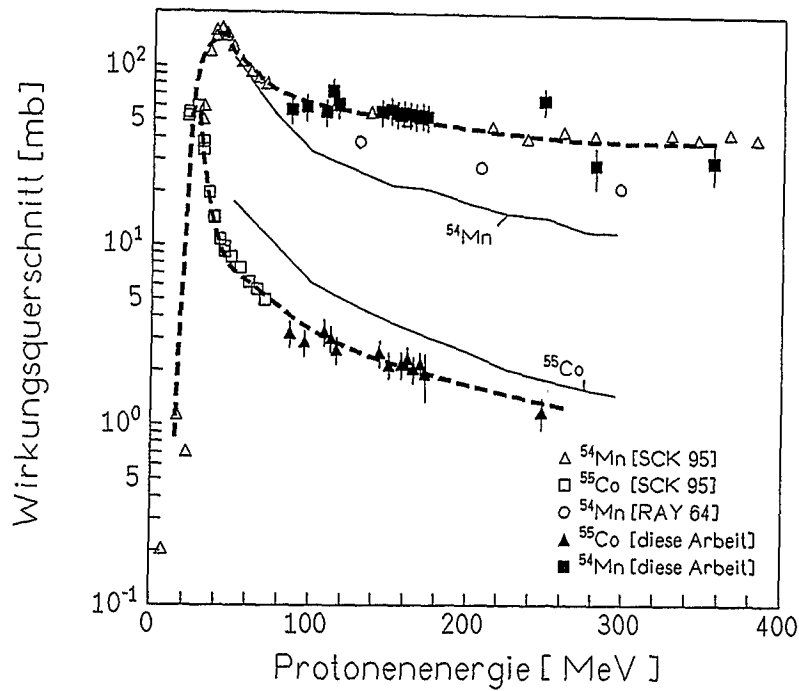


Abb 5.28: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $\text{Fe}(p,x)^{54}\text{Mn}$ und ^{55}Co . Dargestellt sind die Ergebnisse dieser Arbeit (Exp: Symbole, Th: Linien) zusammen mit Literaturdaten

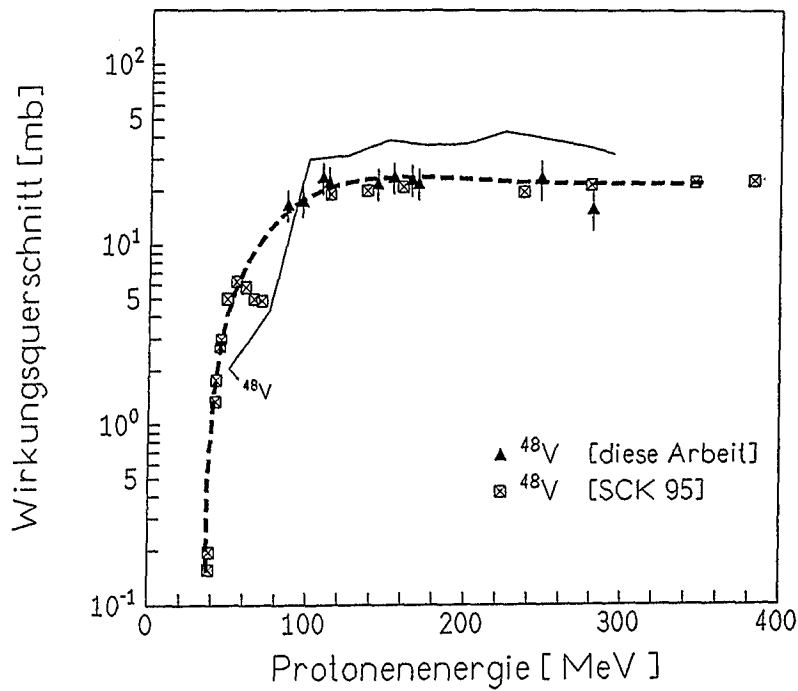


Abb 5.29: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $\text{Fe}(p,x)^{54}\text{Mn}$ und ^{55}Co . Dargestellt sind die Ergebnisse dieser Arbeit (Exp: Symbole, Th: Linien) zusammen mit Literaturdaten

Tab 5.18: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{nat}\text{Fe}(p,x)$ $^{48,51}\text{Cr}$, $^{52g,54}\text{Mn}$, ^{52}Fe (kumulativ)

E/MeV	^{48}Cr	^{51}Cr	^{52g}Mn	^{54}Mn	^{52}Fe
	σ/mb				
$352,76 \pm 0,02$	$0,96 \pm 0,24$	$41,75 \pm 4,58$		$30,29 \pm 7,50$	
$281,00 \pm 0,02$	$1,19 \pm 0,25$			$28,91 \pm 7,51$	$0,56 \pm 0,08$
$247,90 \pm 0,03$	$0,80 \pm 0,41$		$19,84 \pm 2,97$	$66,10 \pm 11,00$	
$173,17 \pm 0,05$	$1,13 \pm 0,13$	$65,64 \pm 7,20$	$22,52 \pm 3,37$	$53,15 \pm 9,00$	$1,23 \pm 0,19$
$169,80 \pm 0,37$	$1,09 \pm 0,13$	$67,55 \pm 7,43$	$21,75 \pm 3,26$	$53,90 \pm 9,16$	$1,37 \pm 0,21$
$165,40 \pm 0,38$	$1,09 \pm 0,13$	$66,78 \pm 7,34$	$22,20 \pm 3,33$	$53,52 \pm 9,10$	$1,28 \pm 0,20$
$161,90 \pm 0,39$	$1,09 \pm 0,13$	$66,10 \pm 7,27$	$23,38 \pm 3,50$	$54,96 \pm 9,34$	$1,28 \pm 0,21$
$157,70 \pm 0,40$	$1,06 \pm 0,12$	$60,50 \pm 6,63$	$23,60 \pm 3,54$	$55,89 \pm 9,50$	$1,26 \pm 0,20$
$154,00 \pm 0,40$	$0,80 \pm 0,09$	$68,48 \pm 7,53$	$22,44 \pm 3,37$	$55,44 \pm 9,42$	$1,06 \pm 0,17$
$149,70 \pm 0,40$	$1,02 \pm 0,12$	$65,66 \pm 7,22$	$25,07 \pm 3,76$	$57,54 \pm 9,78$	$1,29 \pm 0,21$
$143,70 \pm 0,42$	$0,97 \pm 0,11$	$69,13 \pm 7,60$	$23,14 \pm 3,47$	$56,28 \pm 9,55$	$1,45 \pm 0,23$
$116,60 \pm 0,04$	$0,90 \pm 0,11$	$69,20 \pm 7,60$	$19,40 \pm 2,91$	$62,10 \pm 10,50$	$1,58 \pm 0,25$
$112,96 \pm 0,05$	$0,93 \pm 0,11$	$67,00 \pm 7,36$	$26,90 \pm 4,03$	$73,20 \pm 12,44$	$1,58 \pm 0,25$
$108,81 \pm 0,05$	$0,85 \pm 0,10$	$68,30 \pm 7,50$	$20,90 \pm 3,13$	$56,00 \pm 9,52$	$1,58 \pm 0,25$
$96,08 \pm 0,05$	$0,90 \pm 0,11$	$74,50 \pm 8,19$	$25,70 \pm 3,85$	$59,50 \pm 10,11$	$1,69 \pm 0,27$
$86,65 \pm 0,05$	$0,83 \pm 0,10$	$70,30 \pm 7,73$	$28,20 \pm 4,23$	$57,30 \pm 9,74$	$1,75 \pm 0,28$

5.3.2 Kupfer

Protonenaktivierungen an Kupfer sind sehr gut untersucht worden; in der Literatur finden sich Wirkungsquerschnitte für die Bildung der zahlreichen Aktivierungsprodukte über den Protonenenergiebereich von der Schwelle bis zu einigen GeV [FRI 54, COL 55, HAL 61, HUD 63, CLI 71, HEY 72, GAR 73, CUM 74, LAG 75, ORT 76, CUM 76, GRU 82a, KOP 85, ALE 87, KOZ 88]. Die (p,x)-Prozesse an Kupferkernen werden häufig als Monitorreaktionen verwendet; in dieser Arbeit wurden die Prozesse $^{nat}\text{Cu}(p,x)$ ^{62}Zn und $^{nat}\text{Cu}(p,x)$ ^{65}Zn zusammen mit den Al-Monitorreaktionen zur Flußbestimmung bei TSL-Bestrahlungen herangezogen ($E_p < 180$ MeV). Für die längerlebigen Aktivierungsprodukte ^{48}V , ^{51}Cr , $^{52g, 54}\text{Mn}$, $^{55,56,57,58}\text{Co}$, die bei der Aktivierung von Kollimatormaterial eine Rolle spielen, sowie für ^{62}Zn , wurden Wirkungsquerschnitte bei zwei Energien oberhalb 200 MeV bestimmt.

Tab 5.19: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{nat}\text{Fe}(p,x)^{44m,47,48}\text{Sc}$, ^{48}V , ^{55}Co (kumulativ)

E/MeV	^{44m}Sc	^{47}Sc	^{48}Sc	^{48}V	^{55}Co
	σ/mb				
$352,76 \pm 0,02$	$5,24 \pm 0,63$	$2,95 \pm 0,35$	$24,99 \pm 5,70$		
$281,00 \pm 0,02$	$4,50 \pm 0,54$	$2,50 \pm 0,31$	$22,43 \pm 5,14$	$15,87 \pm 3,97$	
$247,90 \pm 0,03$		$1,80 \pm 0,22$		$23,50 \pm 5,88$	$1,18 \pm 0,23$
$173,17 \pm 0,05$	$3,35 \pm 0,40$	$1,44 \pm 0,17$	$22,01 \pm 5,00$		$1,92 \pm 0,58$
$169,80 \pm 0,37$	$3,10 \pm 0,37$	$1,27 \pm 0,15$	$19,97 \pm 4,59$	$22,11 \pm 4,42$	$2,18 \pm 0,37$
$165,40 \pm 0,38$	$3,00 \pm 0,36$	$1,23 \pm 0,15$	$21,20 \pm 4,87$	$23,25 \pm 4,65$	$2,05 \pm 0,35$
$161,90 \pm 0,39$	$2,95 \pm 0,35$	$1,34 \pm 0,16$			$2,33 \pm 0,40$
$157,70 \pm 0,40$	$2,89 \pm 0,35$	$1,27 \pm 0,15$	$22,90 \pm 5,25$		$2,17 \pm 0,37$
$154,00 \pm 0,40$	$2,63 \pm 0,32$	$1,15 \pm 0,14$		$23,94 \pm 4,79$	
$149,70 \pm 0,40$	$2,57 \pm 0,31$	$1,23 \pm 0,15$			$2,15 \pm 0,36$
$143,70 \pm 0,42$	$2,36 \pm 0,28$	$1,01 \pm 0,12$	$20,52 \pm 4,70$	$22,09 \pm 4,42$	$2,51 \pm 0,43$
$137,70 \pm 0,04$		$0,98 \pm 0,12$			
$116,60 \pm 0,04$	$1,91 \pm 0,23$	$0,93 \pm 0,11$			$2,62 \pm 0,44$
$112,96 \pm 0,05$	$1,82 \pm 0,22$	$0,78 \pm 0,09$		$22,50 \pm 4,51$	$3,04 \pm 0,52$
$108,81 \pm 0,05$	$1,73 \pm 0,21$	$0,78 \pm 0,09$		$23,90 \pm 4,78$	$3,28 \pm 0,55$
$96,08 \pm 0,05$	$1,08 \pm 0,13$	$0,67 \pm 0,08$		$17,70 \pm 3,54$	$2,89 \pm 0,49$
$86,65 \pm 0,05$	$0,85 \pm 0,10$	$0,47 \pm 0,06$		$16,80 \pm 3,36$	$3,22 \pm 0,55$

Die Ergebnisse (Tab 5.20) sind im Einklang mit den aus [HEY 72] und [MIL 92] (Abb. 5.30-5.33).

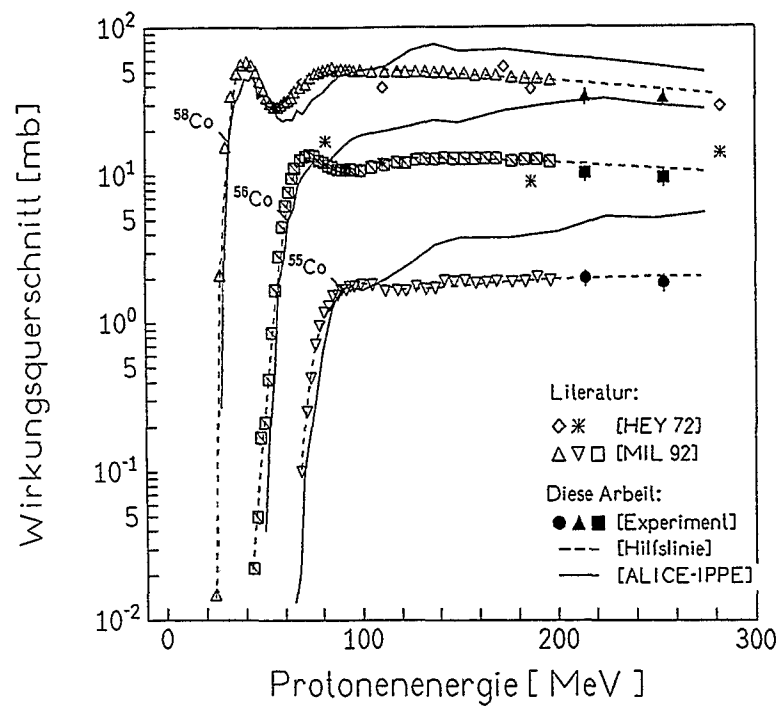


Abb. 5.30: Anregungsfunktionen für die Prozesse $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{55,56,58}\text{Co}$

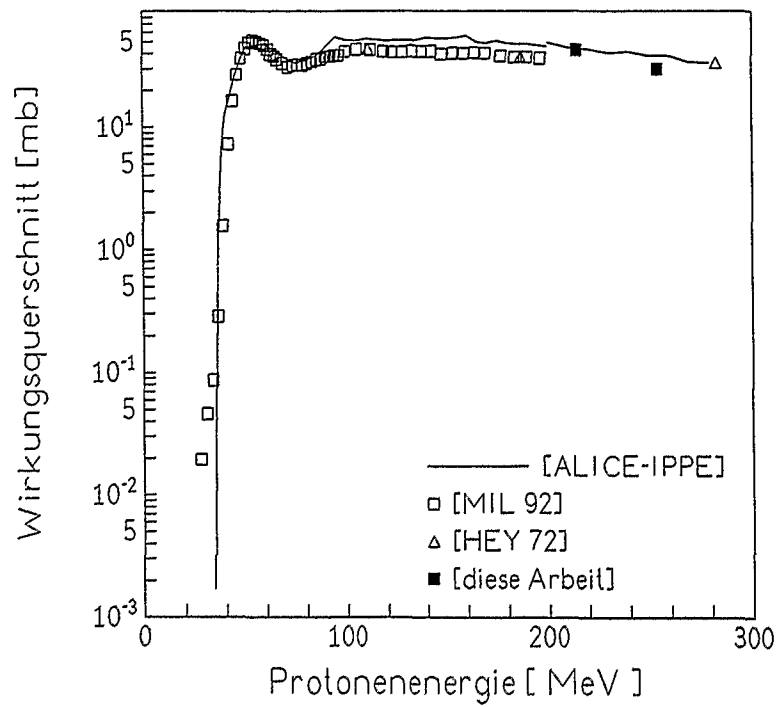


Abb. 5.31: Anregungsfunktionen für den Prozeß $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{57}\text{Co}$

Tab. 5.20: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{nat}\text{Cu}(p,x)$ ^{62}Zn , $^{58,57,56,55}\text{Co}$, $^{52g,54}\text{Mn}$, ^{48}V , ^{51}Cr (kumulativ)

E/MeV	254,08 ± 0,13	214,37 ± 0,13
σ/mb		
^{62}Zn	1,19 ± 0,17	1,61 ± 0,23
^{58}Co	33,42 ± 3,80	34,02 ± 3,90
^{57}Co	30,23 ± 3,80	43,11 ± 5,40
^{56}Co	9,61 ± 1,10	10,18 ± 1,20
^{55}Co	1,96 ± 0,23	2,14 ± 0,22
^{54}Mn	16,30 ± 3,71	13,20 ± 3,10
^{52g}Mn	6,45 ± 0,73	6,22 ± 0,71
^{48}V	3,72 ± 0,60	3,10 ± 0,54
^{51}Cr	9,50 ± 1,50	9,44 ± 1,50

Tab 5.21: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{nat}\text{Cu}(p,x)$ ^{47}Sc , ^{55}Fe (kumulativ), ^{22}Na

E/MeV	^{47}Sc	^{55}Fe	^{22}Na
σ/mb			$\sigma/\mu\text{b}$
257,00 ± 0,13			3,75 ± 0,79
254,08 ± 0,13	0,375 ± 0,033		
214,37 ± 0,13	0,289 ± 0,026		
175,69 ± 0,15	0,258 ± 0,023		
167,80 ± 0,16	0,234 ± 0,021		
160,23 ± 0,35	0,225 ± 0,020		
152,30 ± 0,35	0,197 ± 0,018		
146,86 ± 0,36	0,225 ± 0,020		
135,33 ± 0,18		17,60 ± 2,12	1,44 ± 0,25
117,84 ± 0,20		17,40 ± 2,11	
102,10 ± 0,22		17,80 ± 2,13	

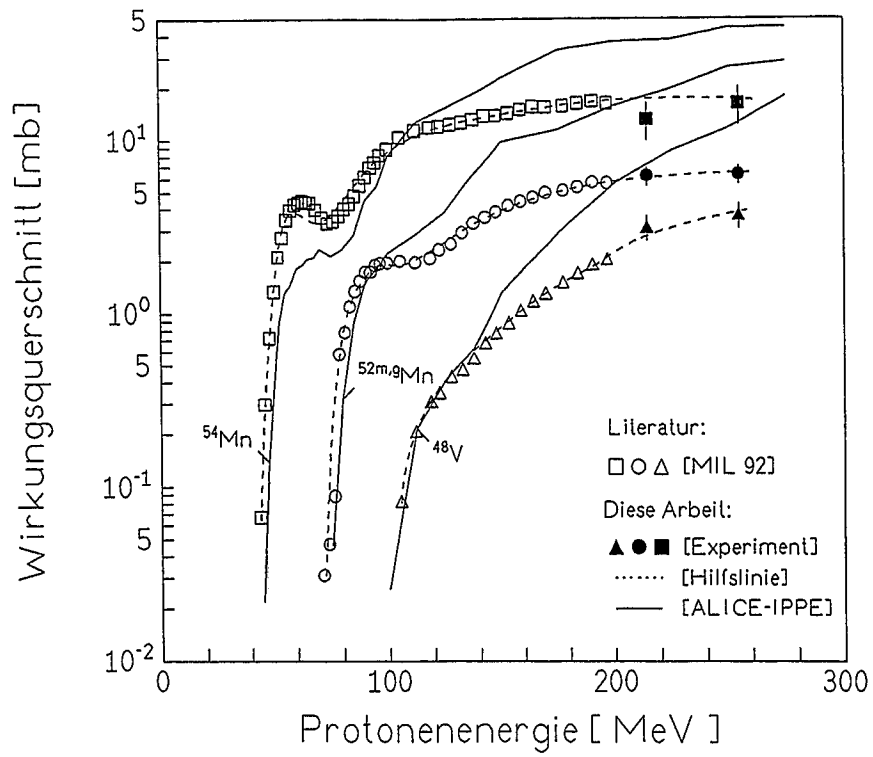


Abb. 5.32: Anregungsfunktionen für die Prozesse $^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x)^{48}\text{V}$, $^{52,54}\text{Mn}$

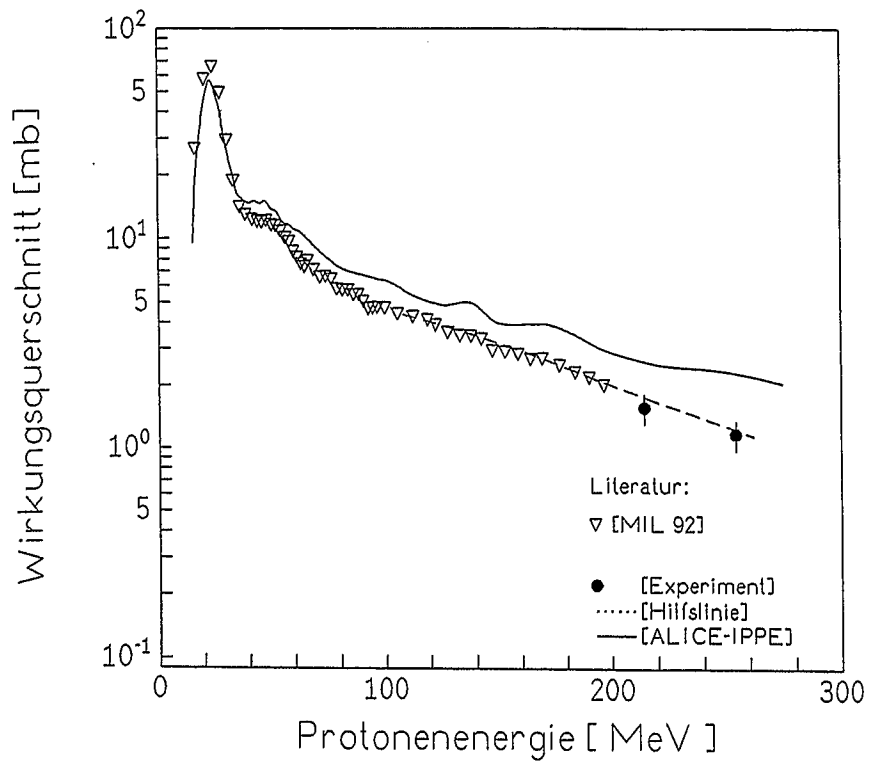


Abb. 5.33: Anregungsfunktionen für den Prozeß $^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x)^{62}\text{Zn}$

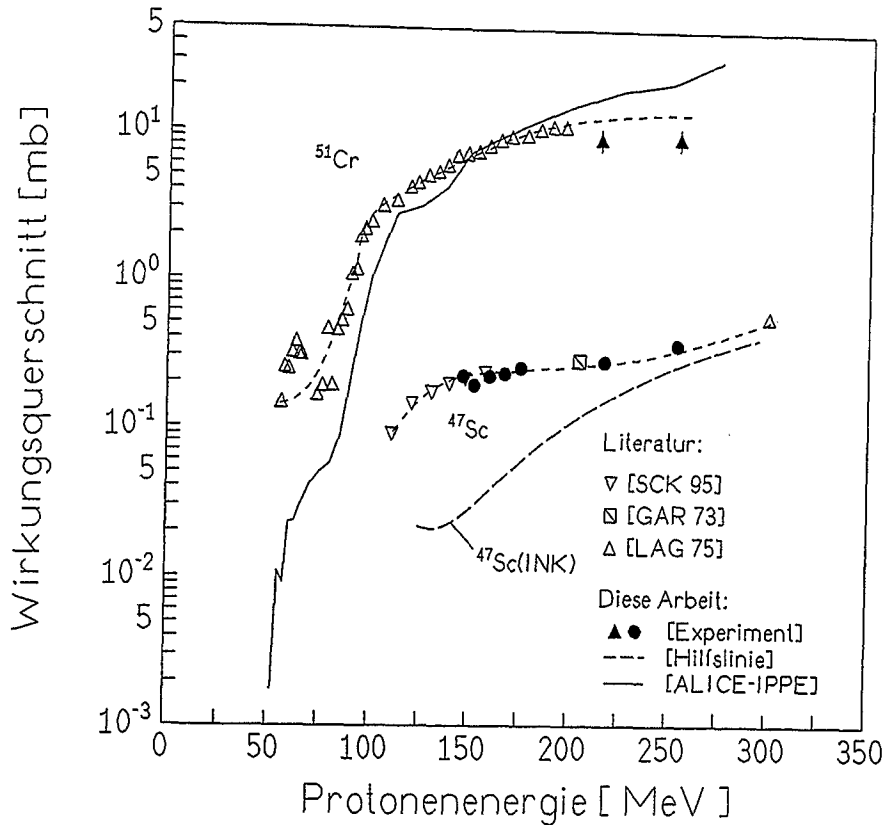


Abb. 5.34: Anregungsfunktion für die Prozesse $^{nat}\text{Cu}(p,x)$ ^{47}Sc und ^{51}Cr

Für ^{47}Sc wurden experimentelle Wirkungsquerschnitte für Protonenenergien im Bereich von 140-220 MeV bestimmt (Tab. 5.21, Abb. 5.34). Die ALICE-Vohergabe von $^{nat}\text{Cu}(p,x)$ ^{47}Sc -Wirkungsquerschnitten war aufgrund der großen Target-Produkt-Massendifferenz nicht möglich; in Abb. 5.34 ist das (polynom-angepaßte) Ergebnis einer von Shubin und Lunev [SHU 96a] durchgeführten Rechnung nach dem Modell der intranuklearen Kaskade (INK) abgebildet.

Die Ergebnisse der ALICE-IPPE-Modellrechnungen (Abb. 5.30 - 5.33) zeigen eine recht gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten; die Kurvenform wurde durch die Theorie gut beschrieben; für die Nuklide mit vergleichsweise großer Massendifferenz zu den Targetkernen $^{55,56,58}\text{Co}$, ^{48}V , und $^{52g, 54}\text{Mn}$ ergab die Rechnung oberhalb 100 MeV Protonenenergie um den Faktor 2-3 erhöhte Wirkungsquerschnitte; eine Ausnahme ist die ^{51}Cr -Bildung, die bis zu etwa 200 MeV gut vorhergesagt, zu höheren Energien dann jedoch überschätzt wird. Gut angenähert in Form und Größenordnung wird die $^{nat}\text{Cu}(p,x)$ ^{62}Zn -Funktion im gesamten Energiebereich bis etwa 250 MeV. Die INK-Rechnung für ^{47}Sc liefert erst ab etwa 250 MeV zufriedenstellende Ergebnisse.

Ein Vergleich der in den Abb. 5.30-5.34 dargestellten ALICE-IPPE-Ergebnisse für die Reaktionen $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{55,56,57,58}\text{Co}$, ^{48}V , $^{52,54}\text{Mn}$, ^{62}Zn und ^{51}Cr mit den von Mills et al. [MIL 92] durchgeführten ALICE-92-Rechnungen zeigt, daß die von Shubin et. al [SHU 96] durchgeführten Programmanpassungen (siehe Kap. 4.2) für die hier betrachteten Reaktionen keine Verbesserung in der Abschätzung der Reaktionswahrscheinlichkeit bringen: Für die ^{55}Co -Querschnitte etwa fallen die ALICE-IPPE-Ergebnisse sogar schlechter aus als bei Mills et. al, während die Anregungsfunktionen für ^{57}Co und ^{48}V ähnlich verlaufen (Abb. 5.35)

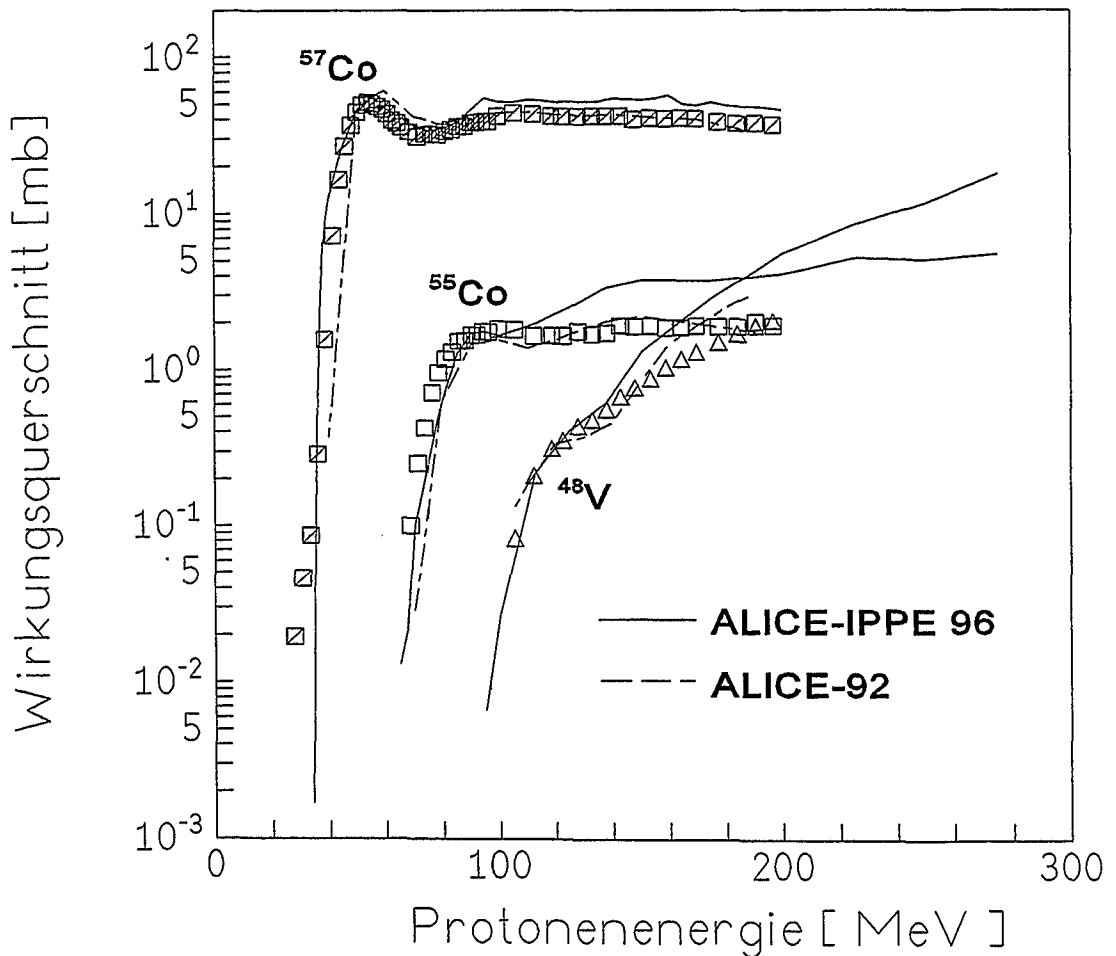


Abb. 5.35: Vergleich der theoretischen Anregungsfunktionen nach ALICE-IPPE [SHU 96] und ALICE-92 [MIL 92] für die $\text{Cu}(p,x)^{55,57}\text{Co}$ und ^{48}V -Reaktionen, die am besten mit den experimentellen Daten [MIL 92, Symbole] ALICE-IPPE übereinstimmen. ALICE-IPPE bringt trotz physikalisch sinnvoller Änderungen im Code keine besseren Ergebnisse

Offenbar spielen sowohl Präcompound-Deuteronen- und γ -Emission als auch Nukleonen- und γ -Konkurrenz beim Weisskopf-Ewing-Zerfall des Compoundkernes bei den hier betrachteten Reaktionen nur eine untergeordnete Rolle.

Die Bildung von ^{55}Fe aus natürlichem Kupfer wurde für einige Protonenenergien bereits untersucht. Nach [HEY 72] beträgt der Wirkungsquerschnitt im gesamten Energiebereich von 82,0 bis 416,0 MeV konstant ($11,0 \pm 1,0$) mb, was eher unwahrscheinlich ist. Friedlander et al. [FRI 54] stellen für 2200 MeV einen Reaktionsquerschnitt von 12,0 mb fest. Die in dieser Arbeit gefundenen Meßpunkte liegen etwa 60 % über den Literaturdaten (Abb. 5.36).

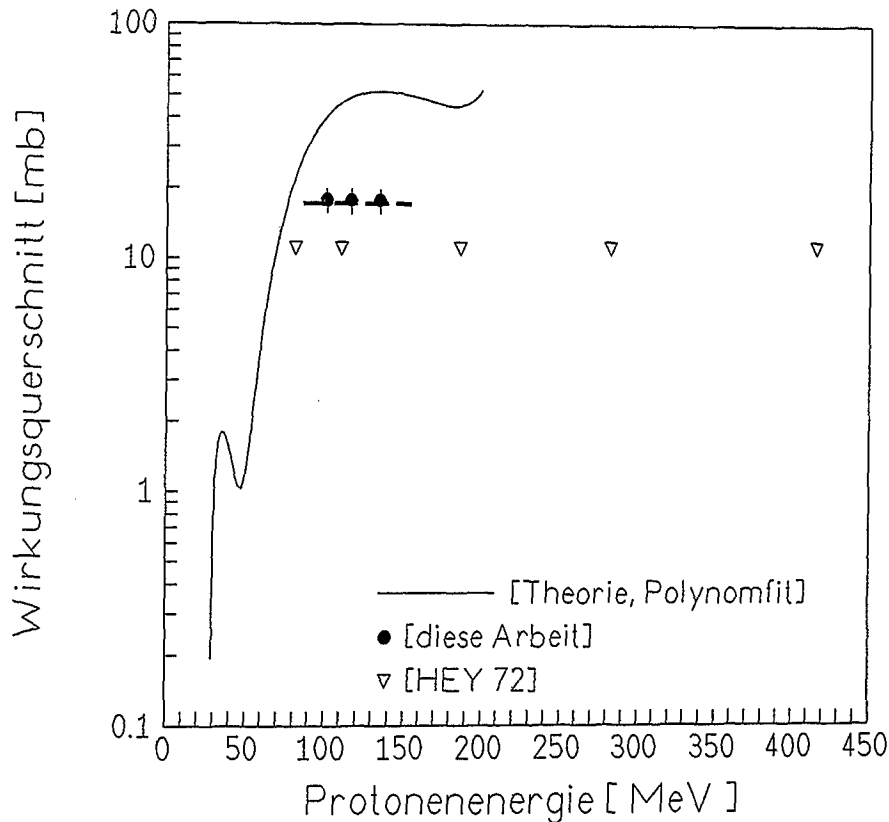


Abb. 5.36: Theoretische und experimentelle Anregungsfunktion für den Prozeß $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{55}\text{Fe}$

Die theoretischen Wirkungsquerschnitte für den $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{55}\text{Fe}$ -Prozeß im untersuchten Energiebereich weichen stark vom experimentellen Befund ab. Offenbar ist die Massendifferenz $^{63,65}\text{Cu}-^{55}\text{Fe}$ bereits zu groß, um eine zuverlässige Vorhersage zu ermöglichen.

5.3.3 Zink

Zink ist als Targetelement weniger gut untersucht als Kupfer. In der Literatur sind (p,xn)-Wirkungsquerschnitte für die Bildung der Galliumisotope ^{66}Ga und ^{67}Ga aus natürlichem Zn und angereichertem ^{66}Zn dokumentiert [BLO 55, HIL 72, TAR 90, KOP 90, NOR 91, SZE 95]. In dieser Arbeit wurde die Bildung der längerlebigen Isotope ^{48}V , $^{52g, 54}\text{Mn}$ sowie $^{55,56,57,58}\text{Co}$ unter-

sucht; in den Abb 5.37-5.39 sind die ermittelten Anregungsfunktionen (Symbole) sowie die Ergebnisse der ALICE-Rechnungen (Linien) dargestellt. Für die Produktnuklide ^{67}Ga und ^{62}Zn , deren Masse sich von denen der Targetnuklide nur wenig unterscheidet, werden die experimentellen Ergebnisse sehr gut durch die Modellrechnung bestätigt, während die theoretischen Wirkungsquerschnitte bei größeren Massedifferenzen durchweg um einen Faktor 2-3 über den experimentellen Daten liegen.

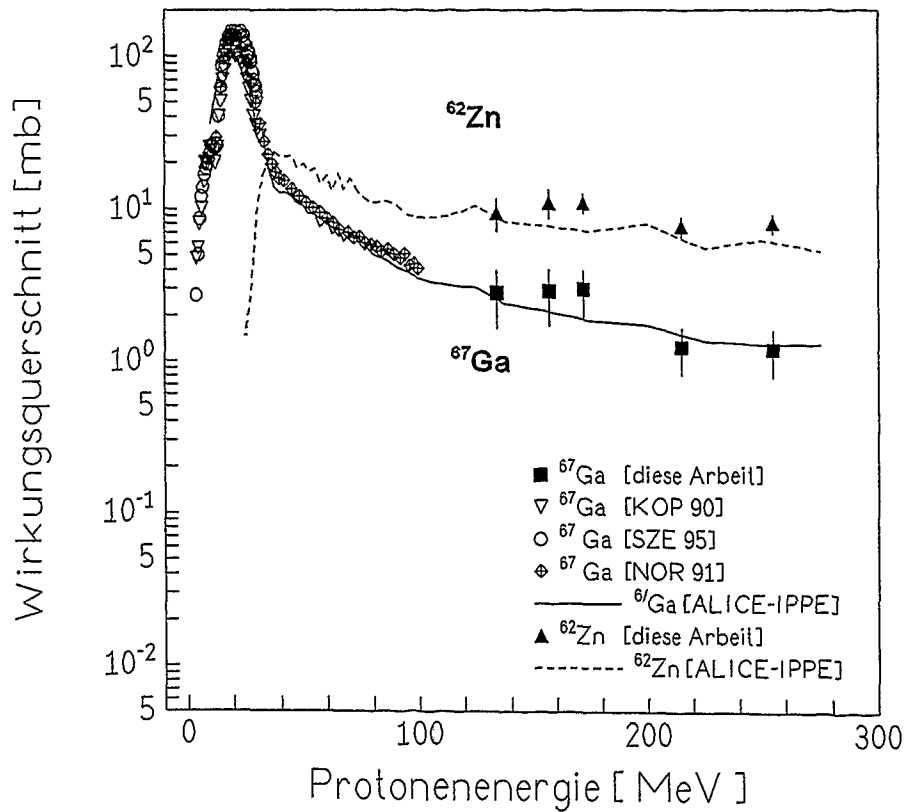


Abb 5.37: Anregungsfunktionen für die Prozesse $^{nat}\text{Zn}(p,x)^{62}\text{Zn}$ und ^{67}Ga . Für ^{67}Ga waren zusätzlich Literaturwerte [KOP 90, NOR 91, SCZ 95] verfügbar

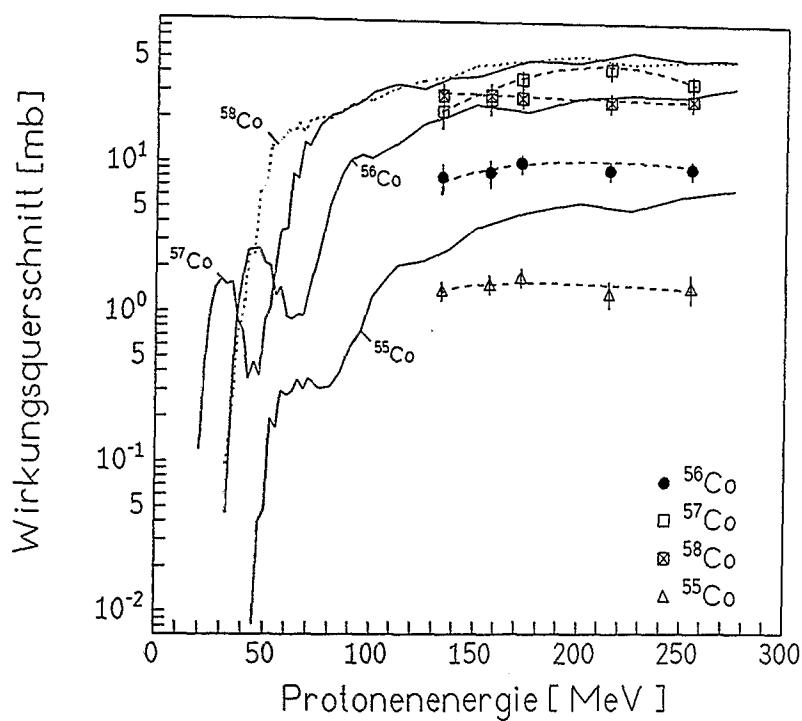


Abb 5.38: Anregungsfunktionen (Exp.: Symbole, Theo.: durchgezogene Kurven) für die Prozesse $^{nat}\text{Zn}(p,x)^{55,56,57,58}\text{Co}$ (mit gestrichelten Hilfslinien)

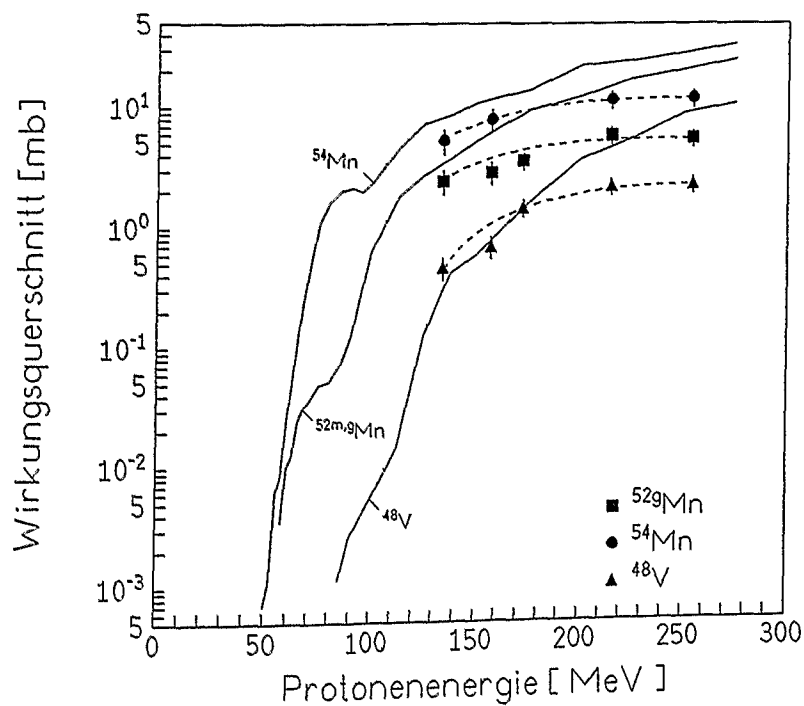


Abb 5.39: Anregungsfunktionen (Exp.: Symbole, Theo.: durchgezogene Kurven) für die Prozesse $^{nat}\text{Zn}(p,x)^{52,54}\text{Mn}$ und ^{48}V (mit gestrichelten Hilfslinien)

Tab 5.22: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{nat}\text{Zn} (p,x) ^{55,56,57,58}\text{Co}, ^{62}\text{Zn}$ (kumulativ)

E/MeV	^{55}Co	^{56}Co	^{57}Co	^{58}Co	^{62}Zn
σ/mb					
$254,30 \pm 0,07$	$1,54 \pm 0,35$	$9,62 \pm 2,21$	$36,35 \pm 7,83$	$27,70 \pm 6,37$	$8,11 \pm 2,03$
$214,70 \pm 0,08$	$1,40 \pm 0,29$	$9,35 \pm 1,96$	$44,80 \pm 7,35$	$26,90 \pm 5,65$	$7,71 \pm 1,70$
$172,00 \pm 0,09$	$1,77 \pm 0,27$	$10,30 \pm 1,54$	$37,70 \pm 5,66$	$28,10 \pm 4,22$	$11,00 \pm 1,64$
$157,00 \pm 0,10$	$1,58 \pm 0,23$	$8,90 \pm 1,33$	$27,40 \pm 4,11$	$29,20 \pm 4,38$	$11,00 \pm 1,64$
$134,00 \pm 0,11$	$1,43 \pm 0,21$	$8,16 \pm 1,22$	$22,60 \pm 3,39$	$28,90 \pm 4,33$	$9,39 \pm 1,41$

Tab 5.23: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{nat}\text{Zn} (p,x) ^{48}\text{V}, ^{52g,54}\text{Mn}, ^{67}\text{Ga}$ (kumulativ)

E/MeV	^{48}V	^{52g}Mn	^{54}Mn	^{67}Ga
σ/mb				
$254,30 \pm 0,07$	$2,26 \pm 0,52$	$5,47 \pm 1,31$	$11,8 \pm 2,83$	$1,19 \pm 0,50$
$214,70 \pm 0,08$	$2,18 \pm 0,46$	$5,78 \pm 1,27$	$11,5 \pm 2,76$	$1,24 \pm 0,51$
$172,00 \pm 0,09$	$1,45 \pm 0,22$	$3,59 \pm 0,61$		$2,97 \pm 1,03$
$157,00 \pm 0,10$	$0,69 \pm 0,10$	$2,86 \pm 0,49$	$7,92 \pm 1,34$	$2,89 \pm 1,01$
$134,00 \pm 0,11$	$0,46 \pm 0,07$	$2,44 \pm 0,41$	$5,31 \pm 0,90$	$2,82 \pm 0,98$

5.3.4 Messing

Die bei der Strahlentherapie eingesetzten Strahlenkollimatoren bestehen in der Regel aus Blei oder Messing. Um die Aktivierung eines Messingkollimators bei Therapiebetrieb abzuschätzen, wurden für wenige Protonenenergien die Hauptaktivierungsprodukte ^{48}V , ^{51}Cr , ^{52}Mn , ^{54}Mn , ^{55}Co , ^{56}Co , ^{57}Co , ^{58}Co , ^{62}Zn , ^{67}Ga in p-aktivierten (63 m-%Cu / 37 m-%Zn)-Messingfolien zerstörungsfrei bestimmt und daraus die materialintegralen Wirkungsquerschnitte berechnet (Tab. 5.24 und 5.25). Die Symbole in den Abb 5.40- 5.43 geben jeweils experimentelle Daten, die geschlossenen Linien die für Messing theoretisch berechneten Anregungsfunktionen (siehe Kap. 1.2.2) wieder. Die Qualität der Modellrechnungen ist mit der für Cu (Kap. 5.3.2) und Zn (Kap. 5.3.3)

vergleichbar; auch hier ergaben sich im Vergleich zum Experiment erhöhte Werte (Faktor 2-3). Sehr gut werden die ^{67}Ga - und ^{62}Zn - Funktionen wiedergegeben (Abb. 5.40).

Tab 5.24: Wirkungsquerschnitte für die (p,x) $^{55,56,57,58}\text{Co}$ - Prozesse in Messing
(63 m-% Cu, 37% Zn) (kumulativ)

E/MeV	^{55}Co	^{56}Co	^{57}Co	^{58}Co
σ/mb				
350,75 ± 0,10	2,50 ± 0,57		23,31 ± 5,36	
254,60 ± 0,12	1,82 ± 0,38	8,29 ± 1,91		27,00 ± 6,20
214,94 ± 0,14	1,93 ± 0,40	7,87 ± 1,65	29,25 ± 4,11	27,40 ± 5,66
174,60 ± 0,15	1,89 ± 0,28	12,06 ± 1,80	30,30 ± 4,54	38,20 ± 5,70
130,70 ± 0,17	1,78 ± 0,27	12,06 ± 1,80	37,23 ± 5,55	38,20 ± 5,68
130,47 ± 0,17	1,76 ± 0,26	12,70 ± 1,90		37,50 ± 5,63
125,00 ± 0,18	1,75 ± 0,26	11,23 ± 1,68	40,00 ± 5,90	42,33 ± 6,30
103,00 ± 0,20		12,30 ± 1,84		37,30 ± 5,55
79,00 ± 0,25	1,50 ± 0,22	9,12 ± 1,37	36,70 ± 5,45	41,32 ± 6,18

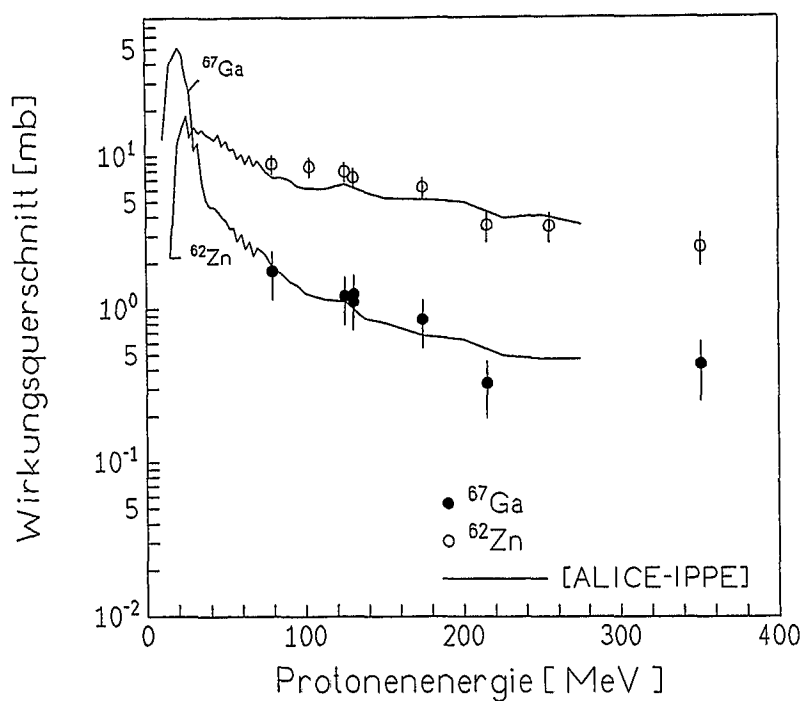


Abb 5.40: Materialintegrale theoretische (Kurven) und experimentelle (Symbole) Anregungsfunktionen für (p,x)-Prozesse zur Bildung von ^{67}Ga und ^{62}Zn bei der Protonenaktivierung von (63 m-%Cu/ 37 %Zn)-Messing

Tab 5.25: Wirkungsquerschnitte für die (p,x) $^{52g,54}\text{Mn}$, ^{62}Zn , ^{67}Ga , ^{48}V - Prozesse in Messing (63 m-% Cu, 37% Zn) (kumulativ)

E/MeV	^{52g}Mn	^{54}Mn	^{62}Zn	^{67}Ga	^{48}V
σ/mb					
350,75 $\pm$ 0,10	9,50 $\pm$ 2,28	30,10 $\pm$ 7,22	2,53 $\pm$ 0,63	0,44 $\pm$ 0,18	6,80 $\pm$ 1,56
254,60 $\pm$ 0,12	5,53 $\pm$ 1,22	13,70 $\pm$ 3,01	3,45 $\pm$ 0,76		2,87 $\pm$ 0,60
214,94 $\pm$ 0,14	5,51 $\pm$ 0,93	13,50 $\pm$ 2,97	3,50 $\pm$ 0,77	0,33 $\pm$ 0,13	2,56 $\pm$ 0,53
174,60 $\pm$ 0,15	3,17 $\pm$ 0,54	18,31 $\pm$ 3,11	6,22 $\pm$ 0,93	0,85 $\pm$ 0,29	2,29 $\pm$ 0,38
130,70 $\pm$ 0,17	3,09 $\pm$ 0,52	13,13 $\pm$ 2,23	7,19 $\pm$ 1,07	1,24 $\pm$ 0,43	0,79 $\pm$ 0,13
130,47 $\pm$ 0,17	3,16 $\pm$ 0,54		7,22 $\pm$ 1,08	1,12 $\pm$ 0,39	
125,00 $\pm$ 0,18	2,42 $\pm$ 0,41	13,90 $\pm$ 2,36	7,89 $\pm$ 1,18	1,21 $\pm$ 0,42	0,51 $\pm$ 0,09
103,00 $\pm$ 0,20	1,98 $\pm$ 0,33		8,49 $\pm$ 1,27		
79,00 $\pm$ 0,25	1,48 $\pm$ 0,25	7,05 $\pm$ 1,20	8,89 $\pm$ 1,33	1,77 $\pm$ 0,62	0,16 $\pm$ 0,03

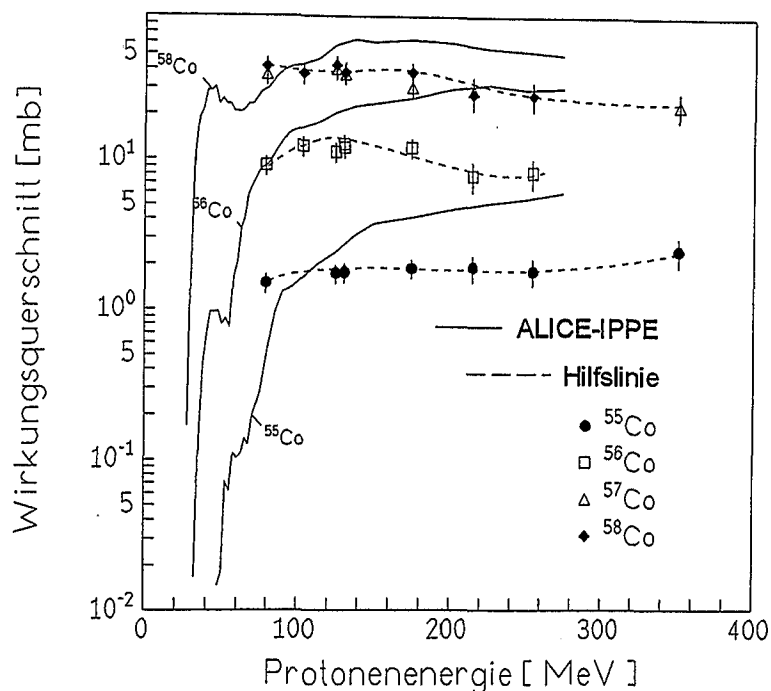


Abb 5.41: Materialintegrale theoretische (Kurven) und experimentelle (Symbole) Anregungsfunktionen für (p,x)-Prozesse zur Bildung von ^{55}Co , ^{56}Co , ^{57}Co und ^{58}Co bei der Protonenaktivierung von (63m-% Cu/ 37% Zn)-Messing

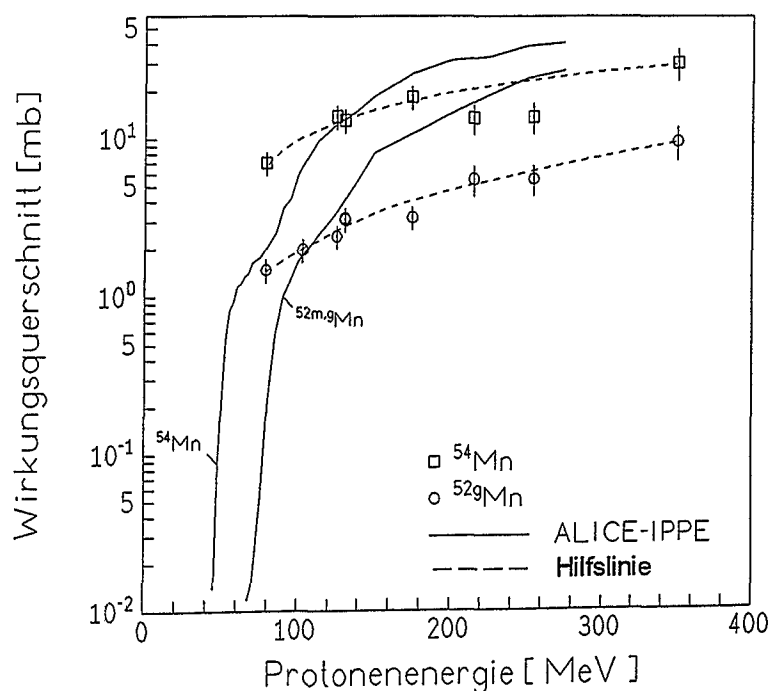


Abb 5.42: Materialintegrale theoretische (Kurven) und experimentelle (Symbole) Anregungsfunktionen für (p,x)-Prozesse zur Bildung von ^{52g}Mn und ^{54}Mn bei der Protonenaktivierung von (63m-% Cu/ 37% Zn)-Messing

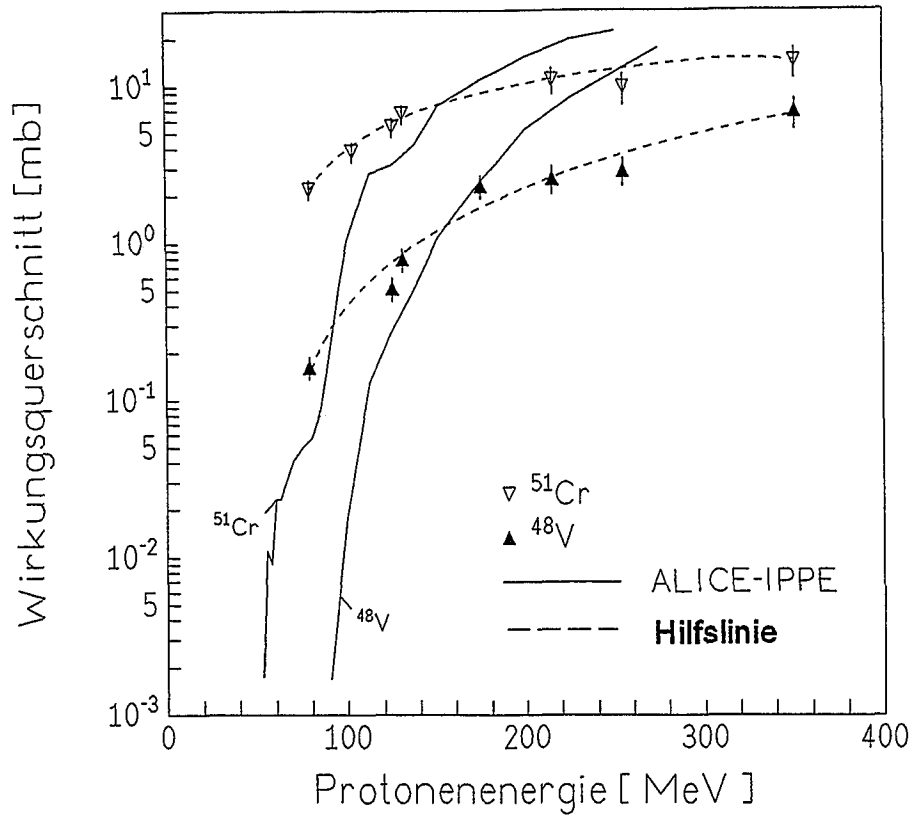


Abb 5.43: Materialintegrale theoretische (Kurven) und experimentelle (Symbole) Anregungsfunktionen für (p,x)-Prozesse zur Bildung von ^{48}V und ^{51}Cr bei der Protonenaktivierung von (63 m-% Cu/ 37% Zn)-Messing

5.3.5 Calcium

Tab 5.26: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{\text{nat}}\text{Ca} (p,x) ^{42,43}\text{K}, ^{47}\text{Ca}, ^{44\text{m}}, ^{48}\text{Sc}$ (kumulativ)

E/MeV	^{42}K	^{43}K	^{47}Ca	$^{44\text{m}}\text{Sc}$	^{48}Sc
	σ/mb			$\sigma/\mu\text{b}$	
$170,27 \pm 0,68$	$0,785 \pm 0,118$	$0,609 \pm 0,090$	$0,206 \pm 0,021$	$21,79 \pm 3,04$	$14,48 \pm 1,92$
$150,44 \pm 0,74$	$0,807 \pm 0,121$	$0,575 \pm 0,080$	$0,205 \pm 0,020$	$25,75 \pm 3,60$	$15,98 \pm 2,12$
$129,30 \pm 0,80$	$0,814 \pm 0,090$	$0,546 \pm 0,054$	$0,225 \pm 0,022$	$26,30 \pm 2,42$	$19,60 \pm 1,88$
$124,60 \pm 0,80$	$0,842 \pm 0,092$	$0,539 \pm 0,054$	$0,222 \pm 0,021$	$26,44 \pm 2,43$	$19,05 \pm 1,83$
$120,99 \pm 0,86$	$0,825 \pm 0,091$	$0,530 \pm 0,053$	$0,233 \pm 0,023$	$27,84 \pm 2,56$	$19,72 \pm 1,89$
$112,02 \pm 0,90$	$0,826 \pm 0,091$	$0,538 \pm 0,054$	$0,232 \pm 0,023$	$30,72 \pm 2,82$	$20,24 \pm 1,94$
$108,18 \pm 0,90$	$0,820 \pm 0,090$	$0,513 \pm 0,051$	$0,233 \pm 0,024$	$30,91 \pm 2,84$	$21,98 \pm 2,11$

Protoneninduzierte Aktivierungsprozesse an Calciumkernen wurden in der Vergangenheit kaum untersucht; so sind nur wenige Daten zur Bildung von Ar-, K-, Ca- und Sc-isotopen durch Niederenergie-Protonen dokumentiert [WAL 76, SCK 95]. In dieser Arbeit konnten ergänzend Wirkungsquerschnitte für die Bildung von $^{42,43}\text{K}$ (Abb. 5.44), ^{47}Ca (Abb. 5.45) und $^{44\text{m},48}\text{Sc}$ (Abb. 5.46) für höhere Protonenenergien bestimmt werden (Tab. 5.26).

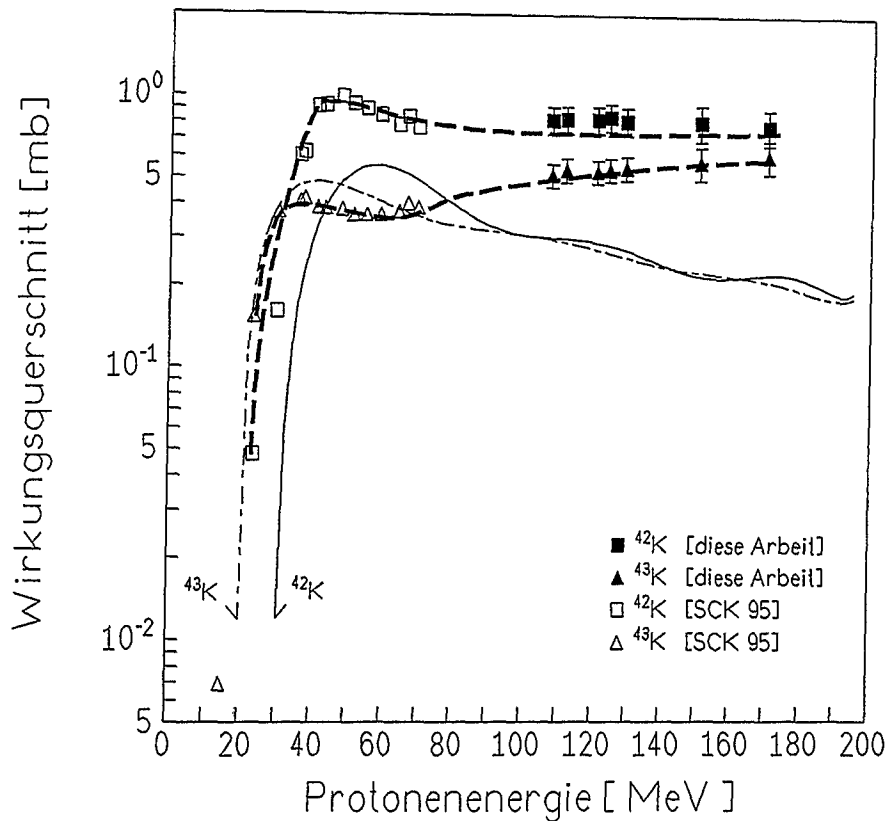


Abb. 5.44: Anregungsfunktionen für die Prozesse $\text{Ca}(p,x) ^{42,43}\text{K}$. Die gekennzeichneten Linien geben die mit dem Code ALICE-IPPE berechneten Anregungsfunktionen wieder (mit gestrichelten Hilfslinien, fett)

An der Produktion der hier behandelten Radionuklide ist das häufigste Targetnuklid ^{40}Ca (Isotopen-Massenanteil 96,94 %) sowie die Nuklide ^{42}Ca (0,647 %) und ^{43}Ca (0,135 %) nicht beteiligt. Die ALICE-Rechnungen lieferten für die Summe der Beiträge zur (p,x) -Bildung von $^{44\text{m},47}\text{Sc}$, $^{42,43}\text{K}$ und ^{47}Ca durch ^{44}Ca (2,086 %) und ^{48}Ca (0,187 %) stets um etwa einen Faktor 2 bis 3 zu kleine Wirkungsquerschnitte. Eine Ausnahme bildet der $(p,x) ^{48}\text{Sc}$ -Kanal, dessen experimentelle Anregungsfunktion sehr gut durch die Modellrechnung nachempfunden wird (Abb. 5.46). Das seltene ^{46}Ca (0,004 %) wurde bei den Rechnungen nicht berücksichtigt.

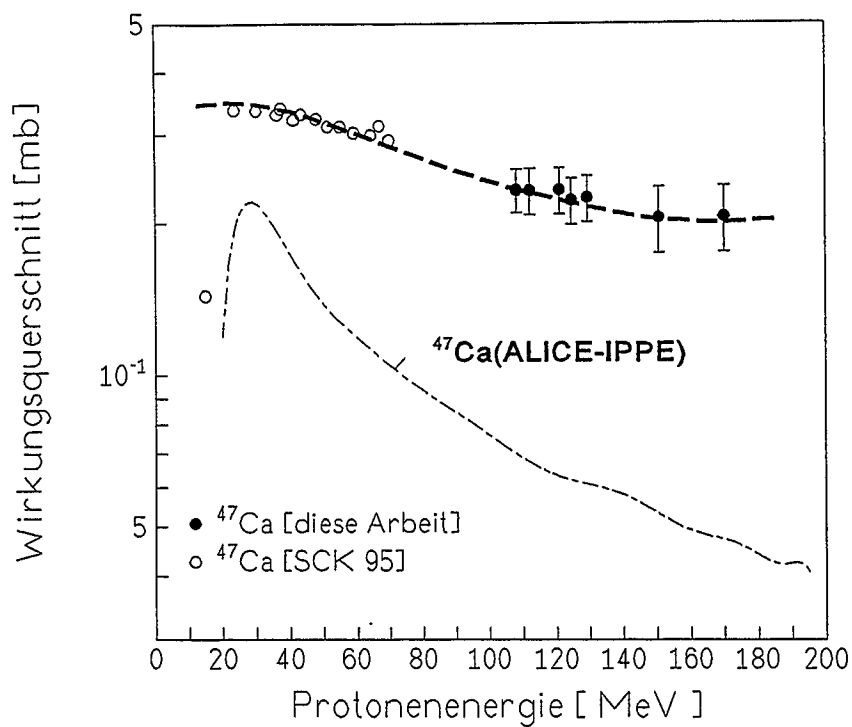


Abb. 5.45: Anregungsfunktionen für den Prozeß $\text{Ca}(p,x)^{47}\text{Ca}$ (mit gestrichelten Hilfslinien, fett)

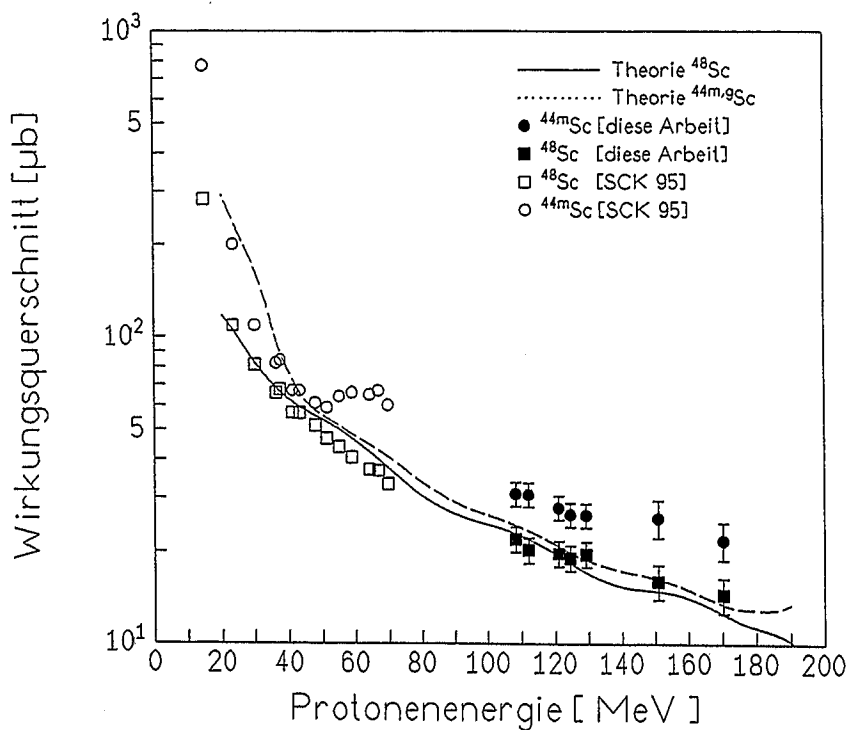


Abb. 5.46: Anregungsfunktionen für die Prozesse $\text{Ca}(p,x)^{44\text{m},48}\text{Sc}$.

5.4 Kurzlebige Positronenstrahler aus Stickstoff und Sauerstoff

Zur Bestimmung der kurzlebigen Positronenstrahler ^{11}C ($T_{1/2} = 20,03$ min), ^{13}N (9,96 min), ^{15}O (2,03 min) wurden in dieser Arbeit zwei Bestrahlungsexperimente (Targets: SiO_2 , Si_3N_4 , Si) am COSY Jülich durchgeführt, die jeweils einen Datenpunkt für die hier in Frage kommenden Prozesse lieferten (Tab. 5.27).

$^{14}\text{N}(\text{p},\text{x})^{11}\text{C}$ - Kernreaktionsdaten sind für Protonenenergien $E_p < 24$ MeV relativ gut bekannt [vgl. SYM 57, CLE 61, BEN 60, VAL 63, EPH 71], während der Energiebereich bis 200 MeV kaum untersucht wurde. Der durch Epherre et al. [EPH 71] dokumentierte Verlauf oberhalb 20 MeV (Abb. 5.47) scheint den durch die Theorie prognostizierten Kurvenverlauf zu bestätigen, wenngleich die Ergebnisse der Modellrechnung nur etwa das 0,3-0,5- fache der experimentellen Daten betragen. Demnach scheint die Anregungsfunktion bei $E_p \sim 37$ MeV ein relatives Minimum zu besitzen, was mit dem Wechsel vom für kleinere Energien dominierenden Prozeß $^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)^{11}\text{C}$ zur multiplen Teilchenemission $^{14}\text{N}(\text{p},2\text{p}2\text{n}+2\text{d}+^3\text{He})^{11}\text{C} + ^{15}\text{N}(\text{p},\alpha\text{n}+\text{x})^{11}\text{C}$ bei höheren Energien erklärt werden kann. Das Hauptedukt für die ^{11}C -Bildung oberhalb 40 MeV wäre demnach ^{15}N , da die αn -Emission die energetisch günstigste Variante im Austrittskanal darstellt.

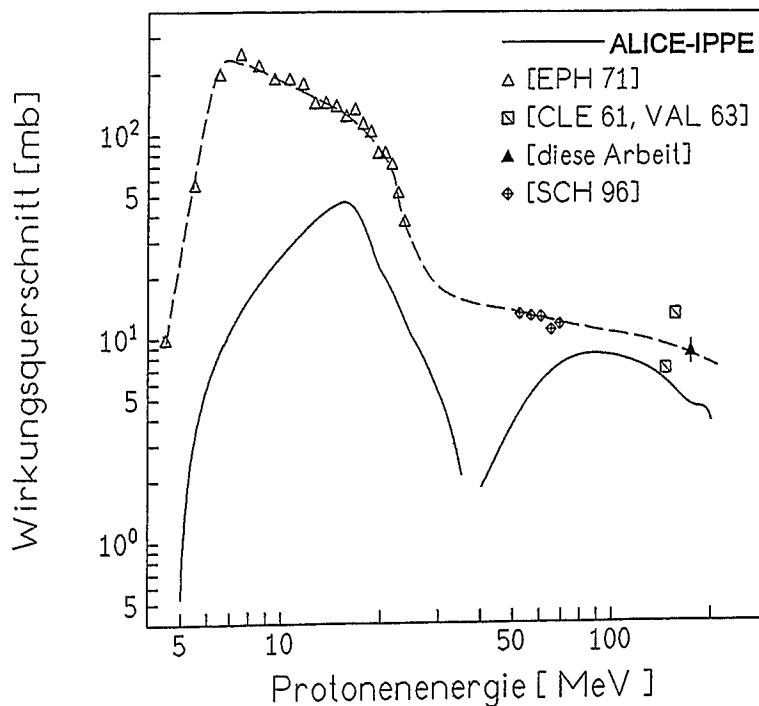


Abb. 5.47: Theoretische und experimentelle Anregungsfunktion für den $^{14}\text{N}(\text{p},\text{x})^{11}\text{C}$ -Prozeß mit Hilfslinie)

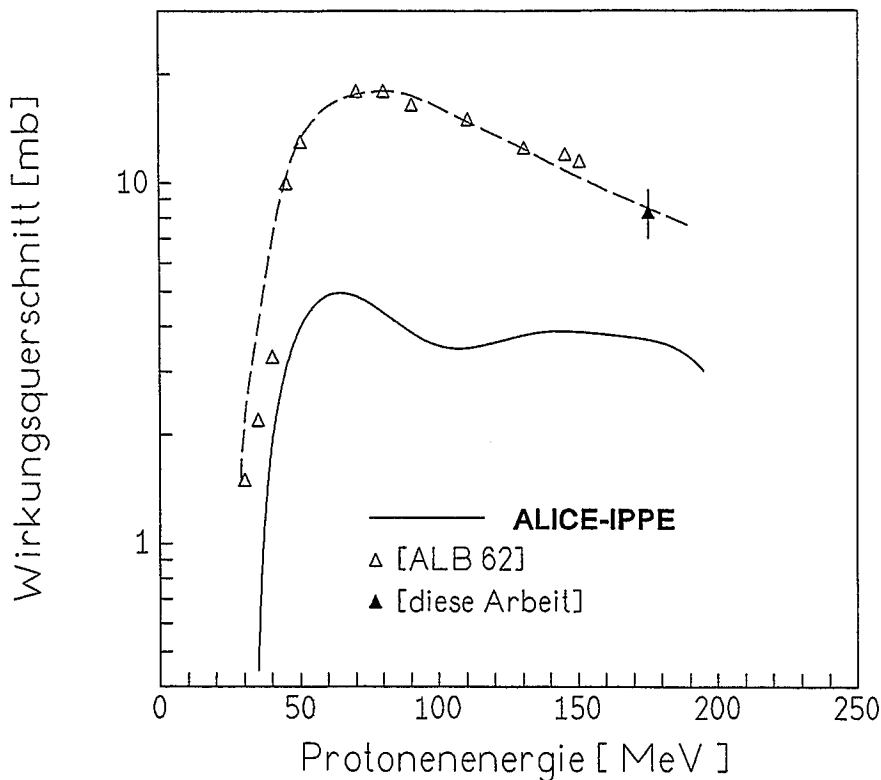


Abb. 5.48: Theoretische und experimentelle Anregungsfunktion für den $^{nat}\text{O}(p,x)^{11}\text{C}$ -Prozeß (mit Hilfslinie)

Da der Anteil von ^{15}N im natürlichen Isotopengemisch nur etwa 0,37 % beträgt, sinkt der Reaktionsquerschnitt von maximal ~ 250 mb zu höheren Energien auf maximal ~ 12 mb (experimentell gefunden durch Scholten und Qaim [SCH 96]) ab. Bei 175 MeV beträgt der Wirkungsquerschnitt noch etwa 9 mb.

Die Anregungsfunktion für den $^{nat}\text{O}(p,x)^{11}\text{C}$ -Prozeß ist im Bereich 155–383 MeV nicht bekannt, während oberhalb 383 MeV und unterhalb 155 MeV verschiedene ältere Literaturdaten vorhanden sind (Abb. 5.48) [vgl. SYM 57, BEN 60, ALB 62, VAL 64]. Die theoretische Anregungsfunktion gibt lediglich in Schwellennähe eine befriedigende Beschreibung; oberhalb 50 MeV kommt es zu Unterschätzungen um den Faktor 5.

Der $^{nat}\text{O}(p,x)^{13}\text{N}$ -Prozeß (Abb. 5.49) wurde im unteren Energiebereich (10 bis 155 MeV) gut untersucht [FUR 60, ALB 62], während für den Bereich von 155 MeV bis 420 MeV bisher keine Daten publiziert wurden; für einige höhere Protonenenergien (420 bis 5700 MeV) sind dagegen Querschnitte bekannt [MAR 52, SYM 57, BEN 60, VAL 63]. Das Ergebnis dieser Arbeit setzt den Trend früherer Messungen fort. In Abb. 5.49 sind auch die ALICE-IPPE-Ergebnisse im Polynomfit (13. Grades) dargestellt; das Minimum bei ~ 28 MeV ist, ähnlich wie beim $^{nat}\text{N}(p,x)$

^{11}C -Prozeß (Abb. 5.47), mit dem Wechsel vom $^{16}\text{O}(p,\alpha)$ -Kanal zur Nukleonenemission zu erklären. Die experimentellen Daten deuten dagegen an, daß sich dieser Übergang schon bei niedrigeren Energien (bei etwa 17 MeV) vollzieht.

Abb. 5.50 gibt die Anregungsfunktion für die Bildung von ^{15}O aus Sauerstoffkernen wieder. Der am COSY gemessene Wert steht im Einklang mit früheren Daten. Der Beitrag durch [BEN 75], bestimmt im Rahmen einer Strahlverlaufsmessung durch Aktivierung von Methylmethacrylat-Flüssigkeitsproben, scheint inkonsistent. Die theoretisch ermittelte Anregungsfunktion liegt auch für Energien $200\text{ MeV} > E > 40\text{ MeV}$ unterhalb der empirisch gefundenen, während für größere Energien wieder eine Annäherung stattzufinden scheint. Generell stimmen die ALICE-IPPE-Rechnungen für Prozesse mit leichteren Targetelementen gut mit experimentellen Befunden überein; insbesondere scheint hier die Einbeziehung von Cluster-Emissionen gerade im niederen Energiebereich eine gute Abschätzung der Reaktionswahrscheinlichkeiten zu geben, während diese ALICE-Modifikation bei der Berechnung mittelschwerer Elemente (Kap. 5.3) keine Verbesserungen bringt, so daß sich ALICE-IPPE zur Beschreibung von Kernprozessen an solchen Targetkernen weniger gut eignet als ALICE-92.

Der $^{14}\text{N}(p,x)^{13}\text{N}$ -Prozeß wurde in dieser Arbeit nicht untersucht. In der Literatur [SYM 57, MAR 58, BEN 60, SAH 60, CLE 61, VAL 64] wird der Energiebereich 20-420 MeV gut beschrieben, während für den Bereich von 522 bis 6200 MeV nur wenige Meßdaten bekannt sind.

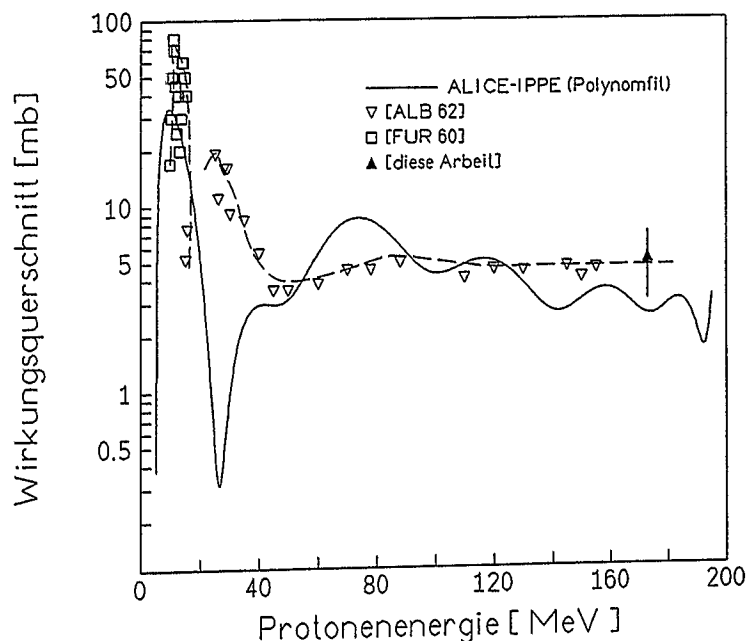


Abb. 5.49: Theoretische und experimentelle Anregungsfunktionen für den $^{16}\text{O}(p,x)^{13}\text{N}$ -Prozeß (mit Hilfslinie)

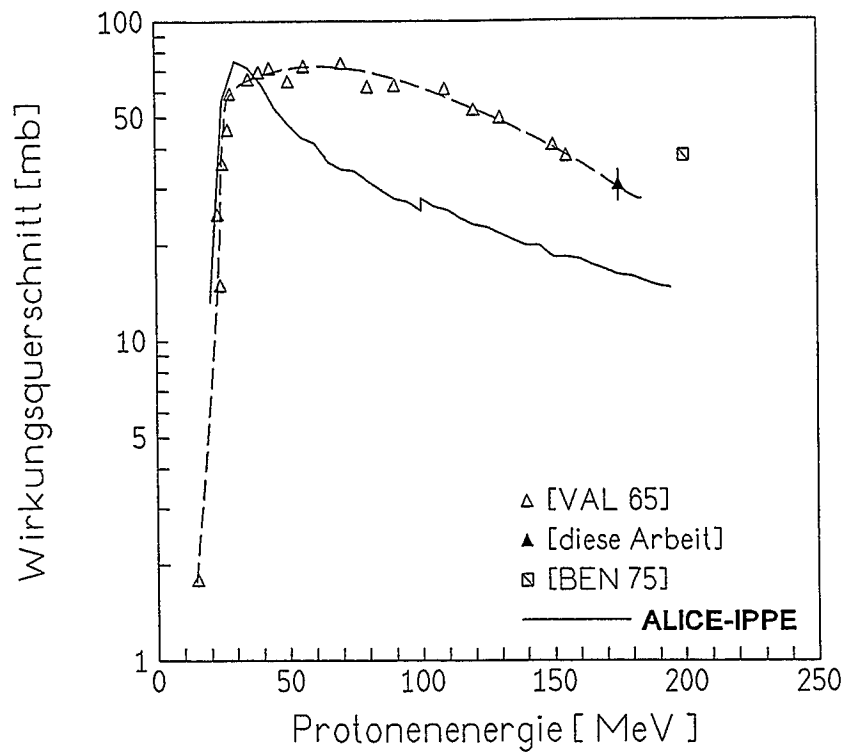


Abb. 5.50: Theoretische und experimentelle Anregungsfunktion für den $^{nat}\text{O}(p,x)^{15}\text{O}$ -Prozeß (mit Hilfslinie)

Die Bildung von ^{18}F aus ^{18}O wurde nicht betrachtet, da die ^{18}O -Isotopenhäufigkeit nur 0,2 % beträgt und somit bei Kernprozessen an biologischem Material vernachlässigbar ist. $^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}$ -Querschnitte wurden an angereichertem ^{18}O [RUT 79, KIT 90] im Energiebereich von der Schwelle bis 30 MeV bestimmt; sie liegen im Wertebereich 20-220 mb.

Tab 5.27: Wirkungsquerschnitte für die Prozesse $^{nat}\text{N}(p,x)^{11}\text{C}$, $^{nat}\text{O}(p,x)^{11}\text{C}$, ^{13}N , ^{15}O (in mb)

E/MeV	$173,0 \pm 2,1^*$	$173,2 \pm 1,9^*$
$^{nat}\text{N}(p,x)^{11}\text{C}$		$8,55 \pm 1,20$
$^{nat}\text{O}(p,x)^{11}\text{C}$	$8,30 \pm 1,30$	
$^{nat}\text{O}(p,x)^{13}\text{N}$	$5,07 \pm 2,00$	
$^{nat}\text{O}(p,x)^{15}\text{O}$	$30,80 \pm 3,50$	

* Energieunsicherheit laut Angaben der Zyklotroningenieure.

6. Systematische Betrachtungen der Kerndaten

6.1 (p, ^7Be)-Prozesse

6.1.1 Einfluß von Kernladung und -masse

Abb. 6.1 zeigt die (p, ^7Be) Anregungsfunktionen einer Auswahl der in dieser Arbeit betrachteten Targetelemente, wobei neben den Ergebnissen dieser Arbeit Literaturdaten [SCH 93, SCK 95] dargestellt sind. Deutlich erkennbar ist die Abnahme der Querschnitte mit wachsender Massenzahl. Funktionen der ^7Be -Produktionsquerschnitte von der Targetkernmassenzahl wurden bereits dokumentiert: Scholten studierte die Protonenenergien 65 und 85 MeV. Wölfle und Qaim [WOL 90] bestimmten (p, ^7Be)-Querschnitte für die Elemente ^{51}V , ^{93}Nb und ^{197}Au bei den Energien 800, 1200 und 2600 MeV und fanden, daß die Wahrscheinlichkeit für die ^7Be -Emission bei 800 MeV stärker von der Massenzahl des Targetkerns abhängig ist als bei 1200 MeV; bei 2600 MeV scheint der (p, ^7Be)-Wirkungsquerschnitt nahezu massenunabhängig zu sein; er nimmt über den Massenzahlenbereich 20-200 Werte von 7 bis 10 mb an. Schiekel [SCK 95] betrachtete

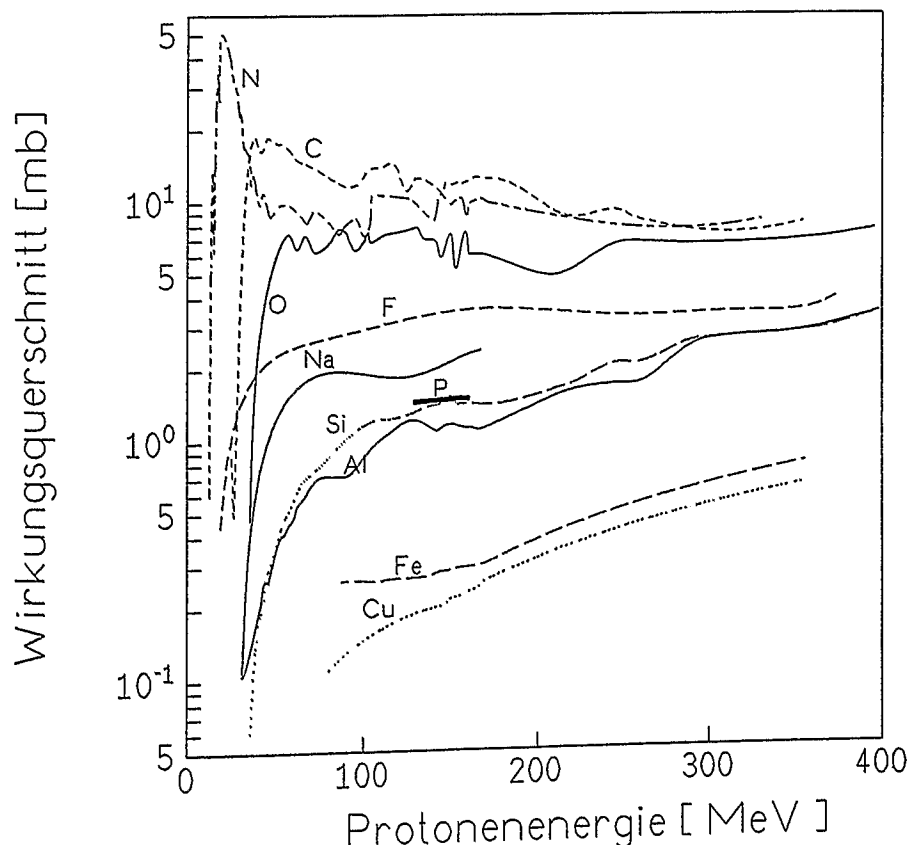


Abb. 6.1: Anregungsfunktionen der (p, ^7Be)-Reaktionen an den Elementen C, N, O, F, Na, Al, Si, P, Fe, Cu

die Systematik bei mittleren Energien. Er fand für 280 MeV und 380 MeV zunächst einen exponentiellen Abfall der Wirkungsquerschnitte bis zu Targetmassen von $A=48$ und stellte für $A>48$ keine signifikante Änderung mehr fest, was auf einen wesentlichen Anteil von Fragmentations- bzw. Spallationsprozessen bei Kernen mit $A>48$ zurückgeführt wurde.

Bei ${}^7\text{Be}$ -Emission im Energiebereich zwischen 100 und 200 MeV handelt es sich vermutlich um Compound- und Präcompound-Kernreaktionen. Der Wirkungsquerschnitt σ für die Emission von ${}^7\text{Be}$ -Kernen kann dann als Produkt aus den Wahrscheinlichkeiten für die Bildung von ${}^7\text{Be}$ -Clustern im Compoundkern und deren Coulomb-Durchdringungswahrscheinlichkeit (Transmission) aufgefaßt werden. Der Transmissionskoeffizient nimmt mit steigender Partikelenergie zu, da das Durchdringen der Coulomb-Barriere bei erhöhtem Energieinhalt wahrscheinlicher ist. Dagegen sollte die Häufigkeit der ${}^7\text{Be}$ -Emission mit steigender Kernladung und -masse abnehmen, da eine erhöhte Coulombschwelle den Teilchenaustritt erschwert, und die ${}^7\text{Be}$ -Clusterbildung bei großen Nukleonenzahlen weniger wahrscheinlich ist. Die Abbildungen 6.2 bis 6.4 zeigen die Auftragungen der in dieser Arbeit gefundenen und in der Literatur dokumentierten Kernreaktionswirkungsquerschnitte gegen die (bei natürlichen Isotopengemischen mittlere) Massenzahl A (Summe der Protonen- und Neutronenzahl) bei Protonenenergien von 180, 100 und 50 MeV.

Die Anregungsfunktionen für die in dieser Arbeit und in der Literatur untersuchten $(p, {}^7\text{Be})$ -Prozesse verlaufen im Energiebereich von 90 bis 200 MeV nahezu konstant, so daß sich die beiden Funktionen $\sigma(A)$ nicht wesentlich unterscheiden. Man findet die beiden empirischen Beziehungen:

$$\sigma \cdot \text{mb}^{-1} = 1733,72 \cdot A^{-2,057} \quad (6.1)$$

für $E_p = 180$ MeV und

$$\sigma \cdot \text{mb}^{-1} = 107056,0 \cdot A^{-2,717} \quad (6.2)$$

für $E_p = 100$ MeV, mit deren Hilfe sich die Wirkungsquerschnitte für andere Kerne abschätzen lassen. Die mittlere quadratische Abweichung des Schätzwertes vom experimentellen Wert liegt bei 33,0 % (Korrelationskoeffizient für die doppelt-log. Regression 0.951) für 180 MeV (1733), was in etwa der Meßunsicherheit für die Nichtmetallnuklide um $A=35$ entspricht. Für 100 MeV beträgt die Abweichung im Mittel nur 18,6 % (Korrelationskoeffizient für die doppelt-log. Regression 0.996). Legt man die Formeln (6.1) und (6.2) zugrunde, dann ergeben sich z.B. für

die Targetnuklide ^{35}Cl , ^{37}Cl und ^{209}Bi die in Tab 6.1 angeführten Schätzwerte für $(p, ^7\text{Be})$ -Querschnitte.

Tab. 6.1: Schätzwerte für massenabhängige $(p, ^7\text{Be})$ - Wirkungsquerschnitte (in mb)

	^{35}Cl	^{37}Cl	^{209}Bi
180 MeV	1,155	1,007	0,029
100 MeV	0,68	0,59	0,0053

Danach läge $\sigma(p, ^7\text{Be})$ für ^{209}Bi und 100 MeV bei ca. 5 nb; der experimentelle Wert für 55 MeV-Protonen liegt nach Neumaier et al. [NEU 93] bei etwa 200 nb, so daß für 100 MeV $\sigma \gg 5$ nb zu erwarten ist und hier die empirische Formel versagt, obwohl Gold (^{197}Au) noch in die Systematik paßt. Offenbar trägt beim Bi, im Gegensatz zu leichten und mittelschweren Kernen, schon die Kernspaltung zur ^7Be -Bildungswahrscheinlichkeit bei. Für Protonenenergien von $E_p = 50$ MeV läßt sich keine einfache empirische Formel für Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Massenzahl angeben; verfügbare Literaturdaten [ALB 62, GAU 62, WIL 67, BIM 71, SCH 93, SCK 95] streuen in der doppelt-log. Auftragung stark um eine mögliche Gerade (Abb. 6.4). Ähnlich verhält sich die Funktion des Wirkungsquerschnittes von der Ordnungszahl des Targets, da für Kerne niedriger und mittlerer Masse annähernd $Z \approx A/2$ gilt. Man findet näherungsweise (Gl. 6.3) für $E_p = 180$ MeV

$$\sigma \cdot \text{mb}^{-1} = 431,23 \cdot Z^{-2,092} \quad (6.3)$$

sowie (Gl. 6.4) für $E_p = 100$ MeV, d.h. $\sigma \approx k_1 \cdot 1/Z^2$ für 180 MeV und $\sigma \approx k_2 \cdot 1/Z^3$ für 100 MeV.

$$\sigma \cdot \text{mb}^{-1} = 2431,03 \cdot Z^{-2,92} \quad (6.4)$$

Tab. 6.2: Schätzwerte für kernladungszahlabhängige $(p, ^7\text{Be})$ - Wirkungsquerschnitte (in mb)

	$_{17}\text{Cl}$	$_{47}\text{Ag}$	$_{83}\text{Bi}$
180 MeV	1,150	0,137	0,042
100 MeV	0,617	0,0316	0,006

Auch die Vorrausberechnung des Wirkungsquerschnittes nach der Kernladungszahl liefert für Bi einen im Vergleich zum experimentellen Ergebnis zu niedrigen Wert von 6 nb (Tab. 6.2), während sich die mittelschweren Kerne gut in die Systematik einordnen lassen.

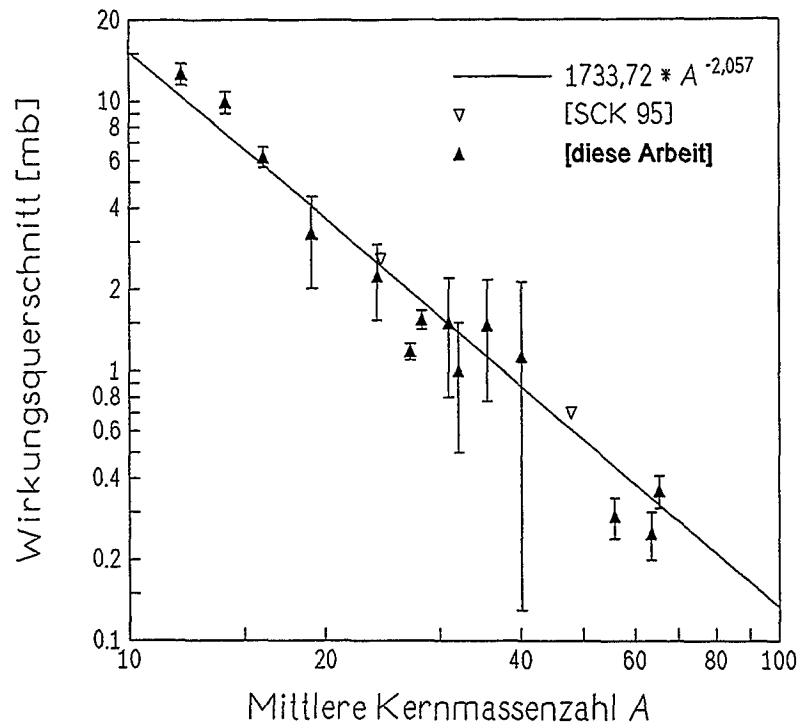


Abb. 6.2: Abhängigkeit des $(p, {}^7\text{Be})$ -Kernreaktionsquerschnittes von der Massenzahl des Targetkerns bei einer Protonenenergie von $E_p = 180$ MeV

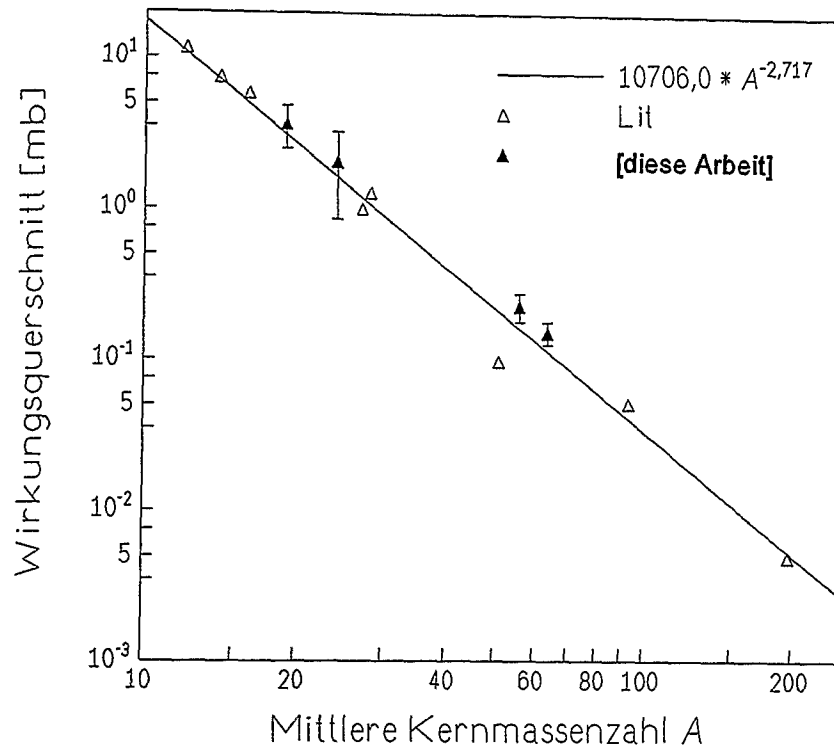


Abb. 6.3: Abhängigkeit des (p, ^7Be)-Kernreaktionsquerschnittes von der Massenzahl des Targetkerns bei einer Protonenenergie von $E_p = 100$ MeV

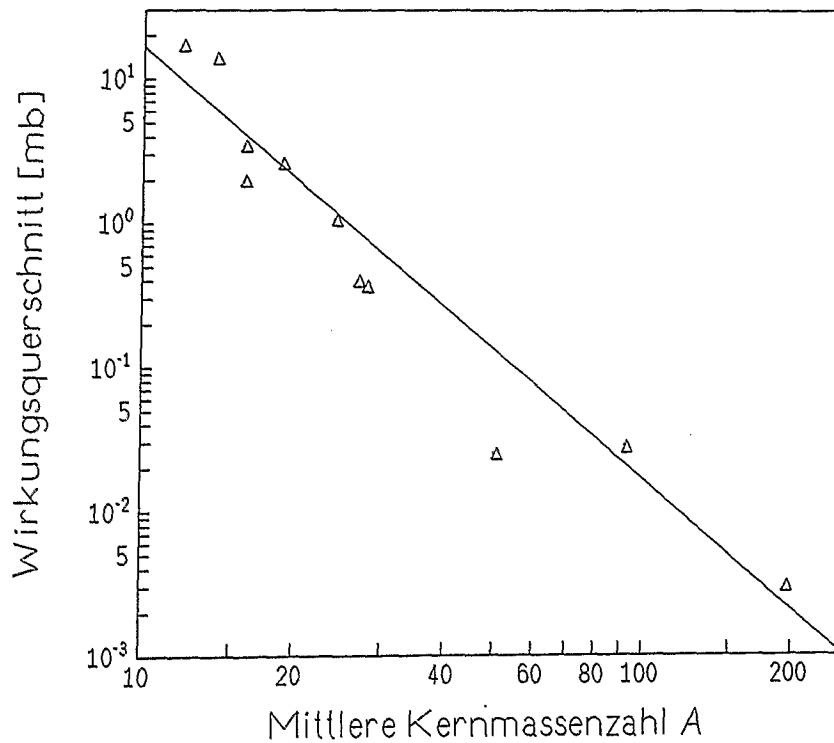


Abb 6.4: Abhängigkeit des (p, ^7Be)-Kernreaktionsquerschnittes von der Massenzahl des Targetkerns bei einer Protonenenergie von $E_p = 50$ MeV

6.1.2 Einfluß der Bindungsenergieparameter

Nach dem Tröpfchenmodell von Bethe und Weizsäcker läßt sich die Kernbindungsenergie aus der Kernladung Z und der Massenzahl A abschätzen:

$$E_b = a_v \cdot A - a_f \cdot A^{2/3} - a_c \cdot \frac{Z^2 - Z}{A^{1/3}} - a_s \cdot \frac{(A - 2Z)^2}{A} + a \cdot \frac{1}{A} \quad (6.5)$$

Analog einer früheren systematischen Betrachtung von $(p, {}^7\text{Be})$ -Emissionen bei Protonenenergien unterhalb 100 MeV [SCH 93] wurden die Wirkungsquerschnitte gegen den Coulomb-Parameter $Z(Z-1)/A^{1/3}$ bzw. den Symmetrieparameter $(A-2Z)^2$ aufgetragen (Abb. 6.5 und 6.6); die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts vom Oberflächenparameter $A^{2/3}$ sollte ähnlich verlaufen wie die Funktionen von Z und A ; bei doppelt-logarithmischer Auftragung ergäbe sich lediglich ein Unterschied in der Steigung der Regressionsgeraden.

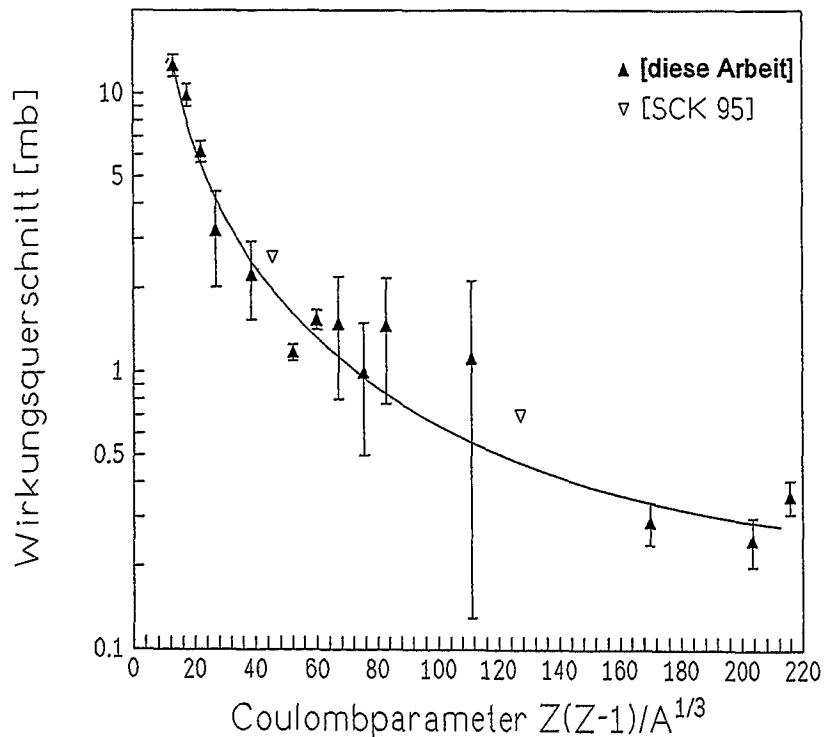


Abb. 6.5: Abhängigkeit des $(p, {}^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitts bei 180 MeV Protonenenergie vom Coulombparameter $Z(Z-1)/A^{1/3}$

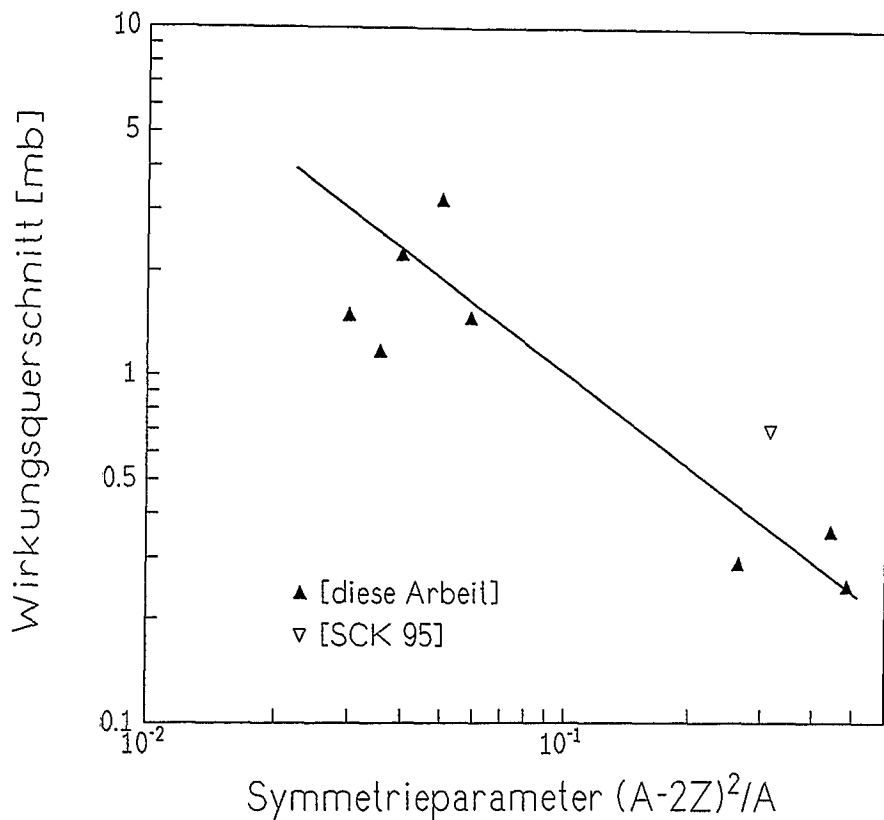


Abb. 6.6: Abhängigkeit des $(p, {}^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitts bei 180 MeV Protonenenergie vom Symmetrieparameter $(A-2Z)^2/A$

Die Funktion vom Coulomb-Parameter zeigt erwartungsgemäß einen ähnlichen Verlauf wie die Abhängigkeiten von A und Z . Die Kurve in Abb. 6.6 zeigt, daß der Wirkungsquerschnitt für größere Unsymmetrien (kleine Symmetrieabweichungen bei leichten Kernen sind wenig aussagekräftig und wurden nicht berücksichtigt) stark abfällt, was bereits durch Scholten [SCH 93] für 65 und 85 MeV-Protonen gezeigt wurde; für Anregungsenergien weit oberhalb des Reaktionsschwellwertes kann der Abfall des Wirkungsquerschnittes mit steigendem Symmetrieparameter nicht mit Bindungsenergie-Betrachtungen erklärt werden. Vielmehr scheint sich hierin die Kernmassenabhängigkeit widerzuspiegeln, da Kerne höherer Massen gleichzeitig höhere Neutronenüberschüsse aufweisen.

6.2 (p,x) ^{22}Na , ^{24}Na -Prozesse

Eine ausführliche Analyse der (p,x)-Emission der Natriumisotope ^{22}Na , ^{24}Na aus verschiedenen Targetkernen mit Kernladungszahlen von $Z=11$ bis $Z=92$ für Protonenenergien von 100 und 400 MeV lieferten bereits Kortling et al. [KOR 67, KOR 70b]. Danach nehmen die Wirkungsquerschnitte für die Produktion von ^{22}Na und ^{24}Na zunächst exponentiell ab und erreichen bei $Z=33$ ein Minimum, was auf die Dominanz von Kaskaden-Verdampfungsprozessen im unteren Massenbereich zurückgeführt wird. Durch einen zunehmenden Beitrag von Spaltungs- und Fragmentationsprozessen mit gleichzeitiger Emission mehrerer Nukleonen und Nukleonencluster kommt es ab $Z=33$ wieder zu einem langsamen Anstieg der Emissionsquerschnitte. Auch eine neuere Studie befaßte sich mit der Sytematik der $^{22,24}\text{Na}$ -Bildung [DIT 90]. Abb. 6.7 zeigt eine Auftragung der Ergebnisse dieser Arbeit für die Protonenenergie $E_p=150$ MeV; für die Bildung von ^{22}Na ist ein nahezu linearer Abfall der Bildungsquerschnitte erkennbar.

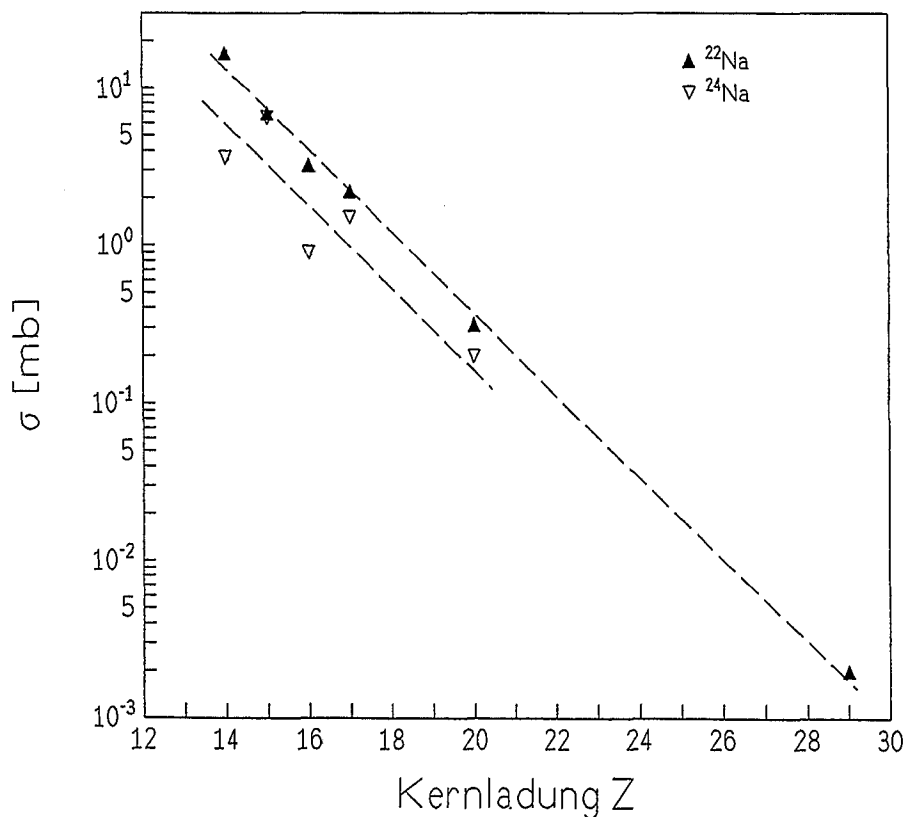


Abb. 6.7: Abhängigkeit der (p,x) $^{22,24}\text{Na}$ -Wirkungsquerschnitte von der Ladung Z des Targetkerns bei $E_p=150$ MeV (mit Hilfslinien)

6.3 Integrale und integrierte Kernreaktionsquerschnitte für Messing

Die Bestimmung von Kernreaktions-Wirkungsquerschnitten für die Bildung von (p,x)-Aktivierungsprodukten bei der Protonenbestrahlung von Messing ist auf zwei Arten möglich: Ist die genaue Zusammensetzung der Legierung bekannt, so können die materialintegralen Wirkungsquerschnitte für das Produkt nuklid A $\Sigma_{\text{Messing}}(\mathbf{A})$ durch Addition der mit den Molenbrüchen n_{Cu} und n_{Zn} multiplizierten Querschnitte für Cu $\sigma_{\text{Cu}}(\mathbf{A})$ und Zn $\sigma_{\text{Zn}}(\mathbf{A})$ berechnet werden (**integrierte** Wirkungsquerschnitte):

$$\Sigma_{\text{Messing}}(\mathbf{A}) = n_{\text{Cu}} \cdot \sigma_{\text{Cu}}(\mathbf{A}) + n_{\text{Zn}} \cdot \sigma_{\text{Zn}}(\mathbf{A}) \quad (6.6)$$

Andererseits können sogenannte **integrale** Querschnitte $\Sigma_{\text{Messing}}(\mathbf{A})$ im Experiment durch Bestrahlung der betrachteten Legierung bestimmt werden. Tab. 6.3 zeigt eine Gegenüberstellung integrierter und integraler Wirkungsquerschnitte für die Bildung einiger Nuklide aus Cu, Zn und Messing der Teilchenzusammensetzung $n_{\text{Cu}} = 0,64$, $n_{\text{Zn}} = 0,36$ unter Verwendung der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit und der Arbeit von Mills et al. [MIL 92] (Extraktion aus den geglätteten Kurven, vgl. Kap. 5). Die Abweichungen betragen (auf die integralen Werte bezogen) maximal 16,5 %.

Tab. 6.3: Vergleich integrierter und integraler Messing (p,x)-Wirkungsquerschnitte für einige Nuklide

E_p (MeV)	^{54}Mn			^{62}Zn			^{67}Ga			^{58}Co		
	inte- griert (mb)	inte- gral (mb)	Δ (%)	inte- griert (mb)	inte- gral (mb)	Δ (%)	inte- griert (mb)	inte- gral (mb)	Δ (%)	inte- griert (mb)	inte- gral (mb)	Δ (%)
250	15,8	13,7	15,3	3,7	3,5	5,7	0,43	0,44	2,2	33,0	30,0	10,0
200	15,2	15,3	0,7	4,5	4,5	0	0,65	0,63	3,2	36,7	37,7	2,7
180	14,7	17,5	16,0	5,3	5,9	10,2	0,67	0,68	1,5	36,3	39,1	7,2
160	12,8	14,5	11,7	5,9	6,5	9,3	1,05	0,98	7,2	36,4	40,8	10,8
140	10,8	12,5	13,6	5,7	6,5	12,3	1,03	1,16	11,2	40,8	42,2	3,3
120	9,6	11,5	16,5	6,4	7,5	14,6	1,01	1,10	8,2	41,5	42,3	1,9

7. Aktivierungs- und Dosisabschätzung

7.1 Aktivierung des menschlichen Gewebes

7.1.1 Energiedegradation

Menschliches Gewebe besteht hauptsächlich aus den Elementen H, C, N, O und Ca. Daneben sind F, Na, Mg, Si, P, S, Cl und Fe als Bestandteile vertreten. Da der Organismus aus sehr vielen Gewebearten von variierender Dichte und Zusammensetzung besteht, kann eine Aktivierung von Gewebe als "Bestrahlungstarget" nur mit relativ großer Unsicherheit abgeschätzt werden. Tab 7.1. gibt die mittlere Zusammensetzung von Muskel- und Knochengewebe, die im Rahmen dieser Arbeit beispielhaft betrachtet wurden, wieder. Grundlage für die Aktivitätsberechnung war Gleichung (1.9a). Das Targetvolumen wurde als "dickes Target" betrachtet, in welchem ein Protonenstrahl der Anfangsenergie $E_p = 200$ MeV entsprechend dem Bethe-Bloch-Formalismus schrittweise (in 10 MeV-Schritten) Energie verlor; dabei wurde vereinfachend angenommen, daß sich Dichte und Elementverteilung während der Bestrahlung nicht ändern. Die für das entsprechenden Energieintervall ($E \rightarrow E-10$ MeV) jeweilige energiedegradierende Gewebe-Flächendichte (stopping power) wurde iterativ für Muskel- und Knochengewebe für die jeweilige Elementzusammensetzung berechnet.

Tab 7.1: Mittlere Elementzusammensetzung (massen-%) des menschlichen Muskel- und Knochengewebes [RSW 87]

	H	C	N	O	Na	Mg	P	S	Cl	Ca	Fe
Muskeln	10,20	12,30	3,50	72,90	0,08	0,02	0,20	0,50	-	0,01	-
Knochen	6,40	27,80	2,70	41,00	-	0,20	7,00	0,20	-	14,70	-

Aus der mittleren Gewebedichte [vgl. RSW 87] und der Differenz der Flächenmassen wurde die Abhängigkeit des Energieverlustes pro Wegstrecke von der Gesamt-Eindringtiefe $-dE/dx(x)$ ermittelt (Abb. 7.1). Demnach verliert der Protonenstrahl zunächst nur wenig Energie; der Energieverlust nimmt dann plötzlich zu und läuft bei etwa 24 cm Eindringtiefe gegen einen theoretisch unendlich, numerisch endlich großen Wert. Die auf diese Weise berechnete Funktion ähnelt den experimentellen Energieabsorptionskurven für beschleunigte, geladene Teilchen (Kap 1.1), die in einer gewissen Eindringtiefe in ein scharfes Maximum (BRAGG-Peak) auslaufen. Aufintegration der Funktion $-dE/dx$ lieferte die Abhängigkeit der Strahlenergie von der Eindringtiefe (Abb. 7.2).

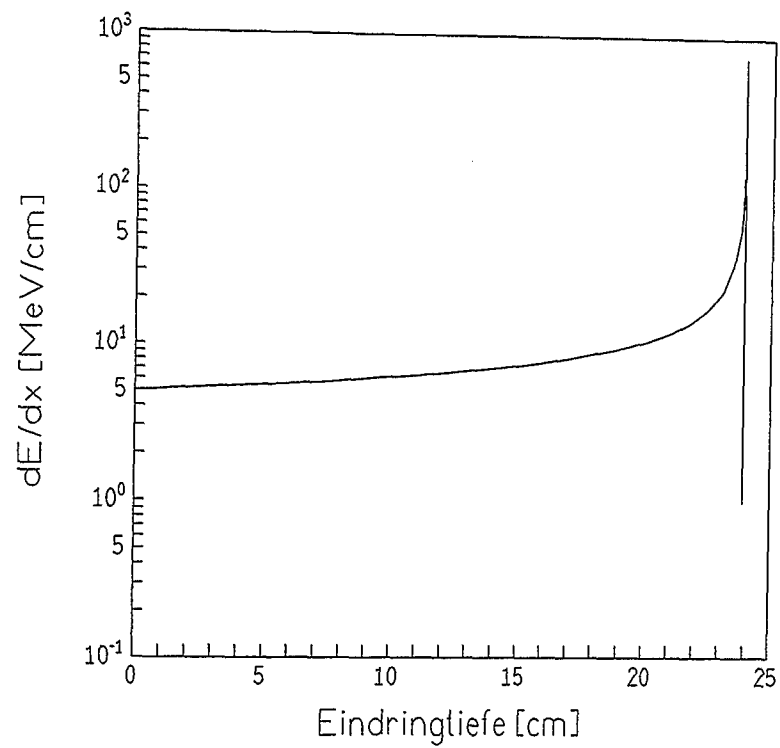


Abb. 7.1: Berechneter Verlauf der Abhängigkeit des Energieverlustes eines Protonenstrahles der Eintrittsenergie $E_p = 200$ MeV in Muskelgewebe von der Strahl-Eindringtiefe

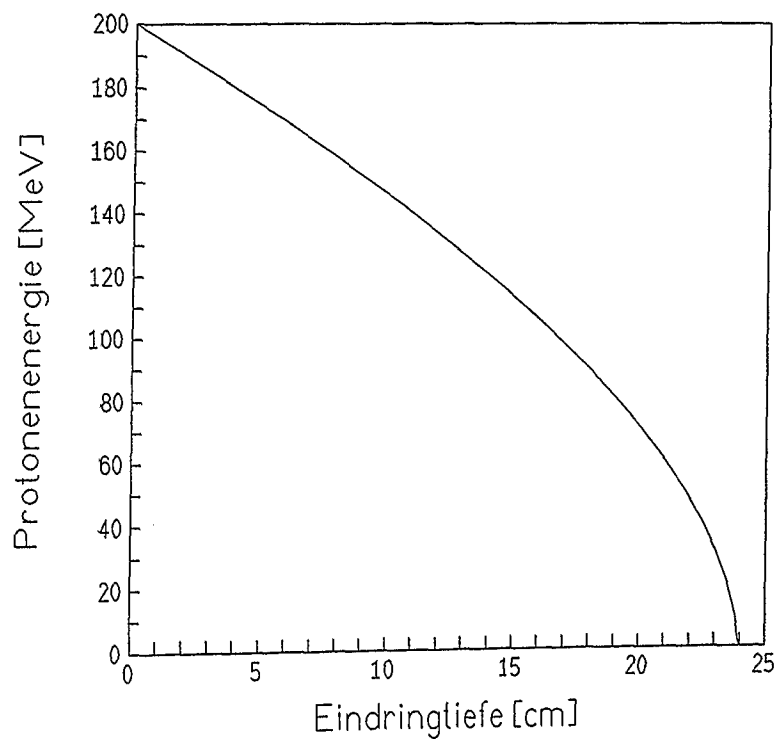


Abb. 7.2: Berechneter Verlauf der Abhängigkeit der Energie eines Protonenstrahles in Muskelgewebe von der Strahl-Eindringtiefe

7.1.2 Bildung von ^{15}O

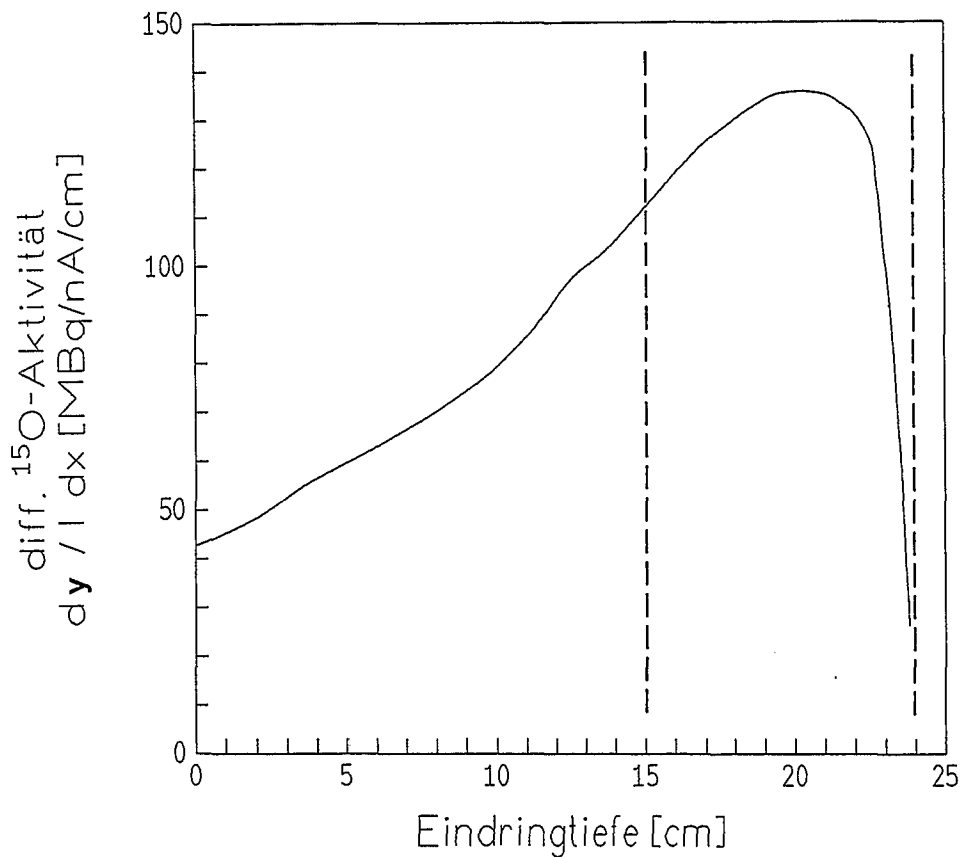


Abb. 7.3: Differentielle ^{15}O -Aktivität dy/dx in Abhängigkeit von der Strahleindringtiefe in Muskelgewebe bei einer Bestrahlungsdauer von 30 min

Durch die Wechselwirkung von Protonen mit Sauerstoffkernen im Gewebe kommt es zur Bildung des Positronenstrahlers ^{15}O ($T_{1/2} = 2,0$ min). Aus dem Verlauf der Strahlenergie (Abb. 7.2), der differentiellen Flächenbewegung $d(px)/dE$ (Stopping-Power) und den entsprechenden $(p,x)^{15}\text{O}$ -Wirkungsquerschnitten (Daten aus [VAL 65] und dieser Arbeit, siehe Abb. 5.50) läßt sich bei Annahme einer konstanten Gewebedichte sowie einer homogenen Verteilung der Elementbestandteile die differentielle Ausbeute pro Strahlstrom dy/dx errechnen. Den Verlauf $dy(^{15}\text{O})/dx$ als Funktion von der Eindringtiefe x in Muskelgewebe zeigt Abb. 7.3.

Demnach wird bei 30-minütiger Bestrahlung bereits in den ersten 6 cm Eindringtiefe (Kollimator-Haut-Abstand = 0) eine Integralaktivität von $330 \text{ MBq/nA} = 8,9 \text{ mCi/nA}$ im Gewebe produziert. Im Bereich des Bragg-Peaks (15 bis 24 cm Tiefe) wird eine ^{15}O -Aktivität von $980 \text{ MBq/nA} = 26,5 \text{ mCi/nA}$ im Gewebe erzeugt.

7.1.3 Bildung von ^{13}N

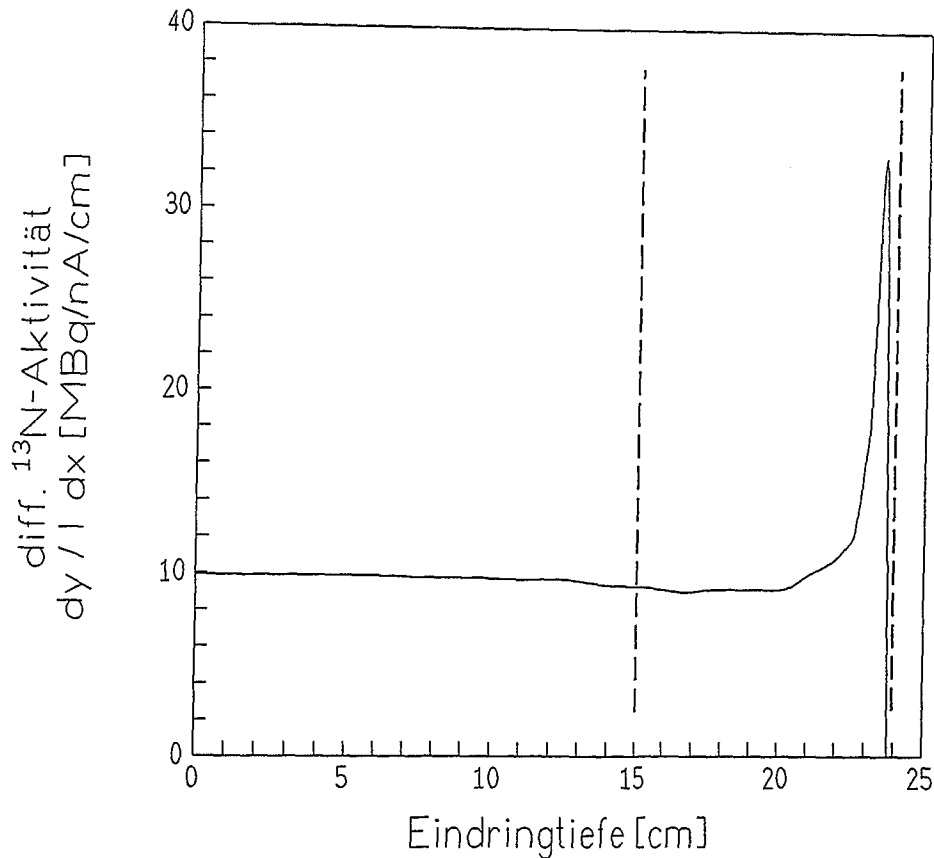


Abb. 7.4: Differentielle ^{13}N -Aktivität dy/dx in Abhängigkeit von der Strahleindringtiefe in Muskelgewebe bei einer Bestrahlungsdauer von 30 min

Ähnlich verhält es sich für die Bildung von ^{13}N (Abb. 7.4); die im Bragg-Peak-Bereich nach 30 Minuten Bestrahlung (hauptsächlich durch $^{16}\text{O}(p,\alpha+2p2n)$) gebildete ^{13}N -Aktivität beträgt etwa $110 \text{ MBq/nA} = 3,0 \text{ mCi/nA}$.

7.1.4 Bildung von ^{11}C

Durch protoneninduzierte Kernreaktionen an C, N und O wird ^{11}C ($T_{1/2} = 20,4 \text{ min}$) gebildet (Abb. 7.5), wobei in den ersten 6 cm Strahlspur eine Gesamtaktivität von etwa 125 MBq/nA ($= 3,4 \text{ mCi/nA}$) ^{11}C -Aktivität erzeugt wird, entsprechend wird im Zielvolumen (15 bis 24 cm) eine Aktivität von $320 \text{ MBq/nA} = 8,6 \text{ mCi/nA}$ ^{11}C gebildet.

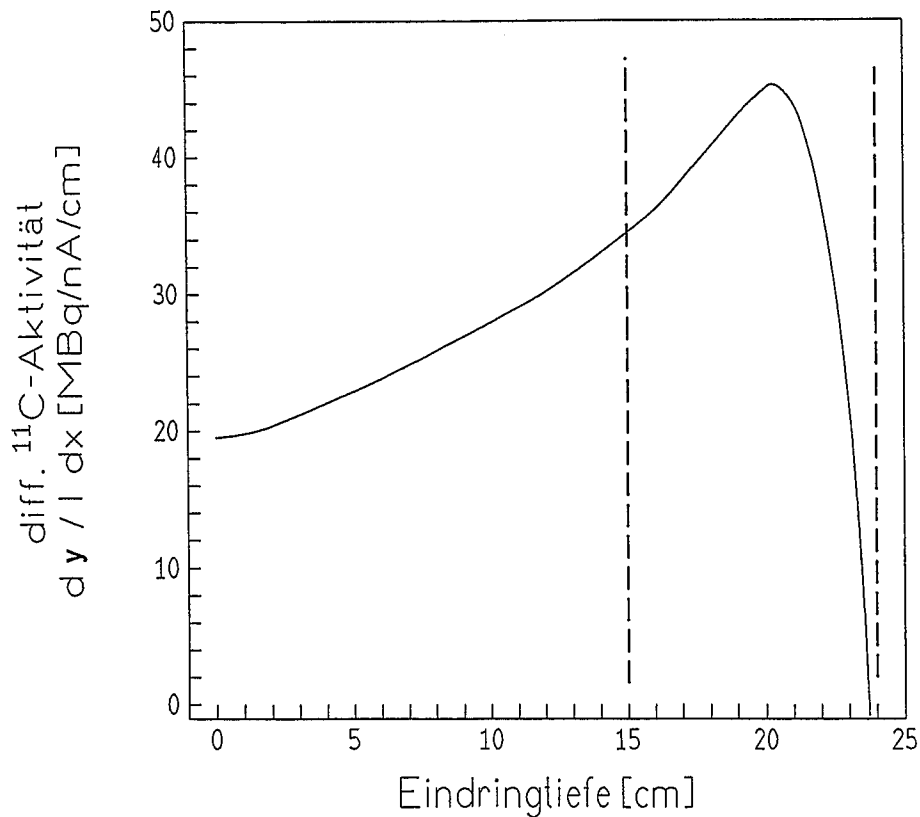


Abb. 7.5: Differentielle ^{11}C -Aktivität dy/dx in Abhängigkeit von der Strahleindringtiefe in Muskelgewebe bei einer Bestrahlungsdauer von 30 min

7.1.5 Bildung von ^7Be und ^{22}Na

Neben kurzlebigen Positronenstrahlern entstehen bei der Wechselwirkung von Hochenergie-Protonen mit menschlichem Gewebe die Nuklide ^7Be , ^{24}Na und ^{22}Na , wobei die Natriumisotope hauptsächlich im Knochenmaterial durch $\text{Ca}(p,x)$ -Prozesse erzeugt werden. Abb. 7.6 zeigt den Verlauf der in der Gewebe-Strahlspur gebildeten differentiellen ^7Be -Aktivität pro nA Protonenstrahlstrom.

Aufgrund der zunächst geringen Strahl-Gewebe-Wechselwirkung wird bei kleinen Eindringtiefen wenig Aktivität gebildet; die Bildungsrate wächst bis zu einem Maximum von ca. 5700 Bq/nA/cm bei 21,3 cm an und fällt dann mit der Strahlenergie (Abb. 7.2) rasch ab. Integral wird in der gesamten Strahlspur auf der Strecke (0 → 24) cm eine ^7Be -Aktivität von $(96,7 \pm 0,5)$ kBq/nA produziert.

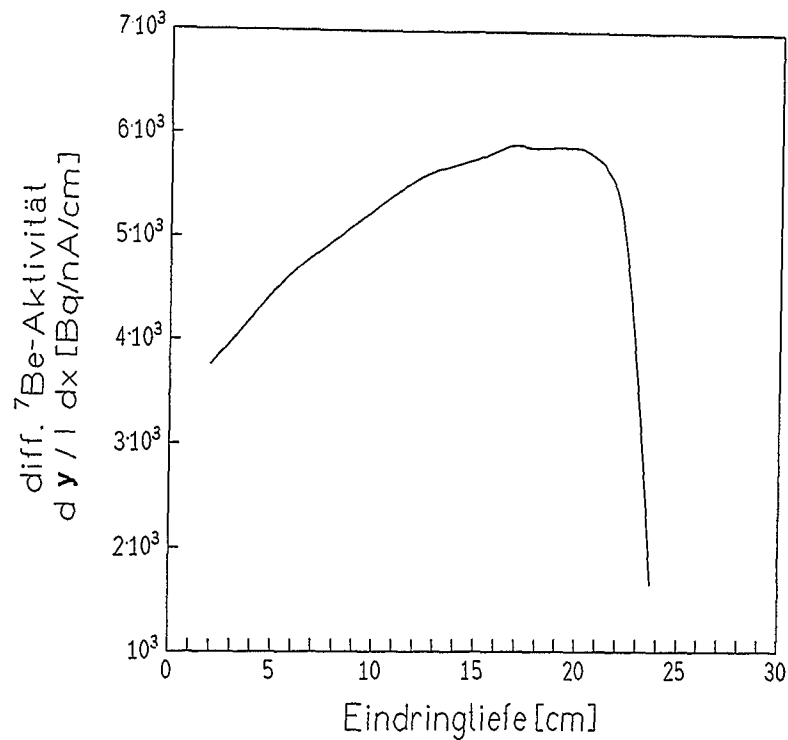


Abb. 7.6: Differentielle ⁷Be-Aktivität in bestrahltem Muskelgewebe in Abhängigkeit von der Strahl-Eindringtiefe bei einer Bestrahlungsdauer von 30 min

Anders verläuft die Bildungsrate von ²²Na in Knochengewebe (Abb. 7.7), die aufgrund fehlender Kerndaten für den Energiebereich < 100 MeV nur bis zu einer Eindringtiefe von etwa 17 cm berechnet werden konnte. Die Hauptaktivität rührt weniger von den Ca- als von den P-Kernen der Knochensubstanz her.

Es ist ersichtlich, daß die Aktivitätsbeiträge durch ⁷Be, ²²Na und Ca-Aktivierungsprodukte im Gewebe vernachlässigt werden können. Die erzeugten ¹¹C- und ¹⁵O-Aktivitäten sind aber vergleichsweise hoch, so daß hier die Möglichkeit einer Positronen-Emissions-Tomographie-(PET)-Untersuchung im Anschluß an die Strahlentherapie besteht, um auf diese Weise einerseits das tatsächlich bestrahlte Zielvolumen zu erfassen und zum anderen -indirekt über die Menge der erzeugten Aktivitäten an Positronenstrahlern- die dem Gewebe zugefügte p-Strahlendosis abzuschätzen.

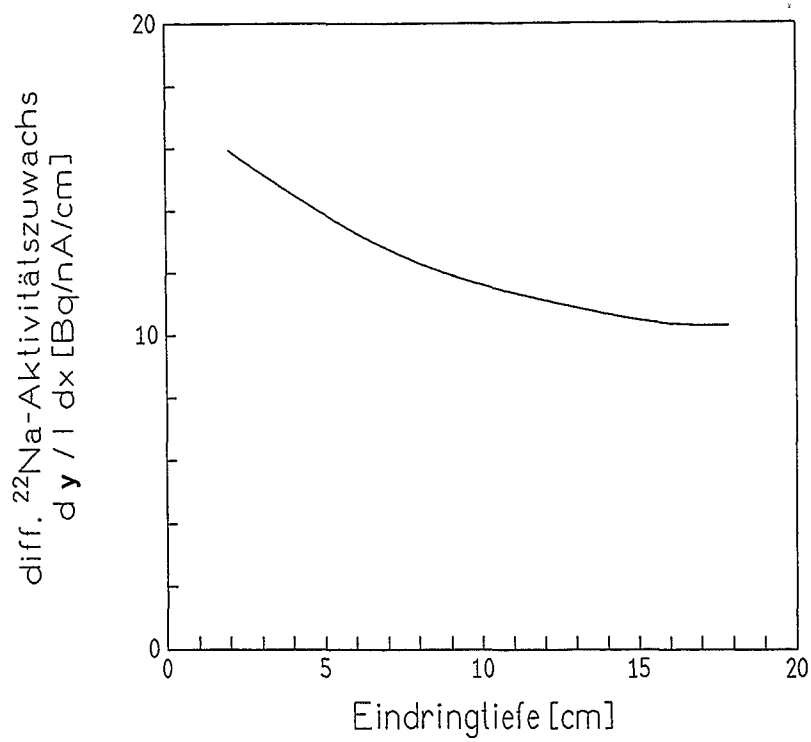


Abb. 7.7: Differentielle ^{22}Na -Aktivität in bestrahlter Knochensubstanz in Abhängigkeit von der Strahl-Eindringtiefe bei einer Bestrahlungsdauer von 30 min

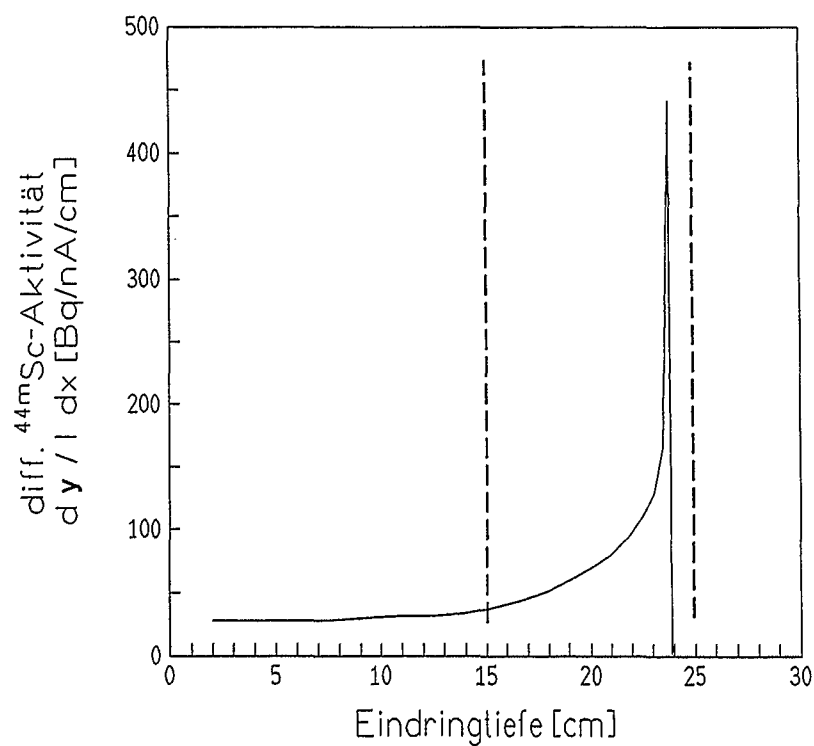


Abb. 7.8: Differentielle $^{44\text{m}}\text{Sc}$ -Aktivität in Abhängigkeit von der Strahleindringtiefe in Knochengewebe bei einer Bestrahlungsdauer von 30 min

7.1.6 Bildung von ^{44m}Sc

Bei der Bestrahlung von Knochensubstanz finden (p,x)-Prozesse an den darin enthaltenen Ca-Kernen statt. Exemplarisch für die dabei entstehenden längerlebigen Restkerne wurde unter Verwendung der ^{44m}Sc -Querschnitte aus dieser Arbeit und aus der Literatur [SCK 95] die ^{44m}Sc -Gewebeaktivierung ($T_{1/2} = 2,44 \text{ d}$) bestimmt (Abb. 7.8).

Dementsprechend werden beim Eintritt eines 200 MeV- Protonenstrahls der Stromstärke 1 nA in Knochengewebe während 30-minütiger Bestrahlung neben kurzlebigen Radionukliden (s.o.) sowie ^7Be , ^{24}Na und ^{22}Na im Bereich des Bragg-Peaks (15 bis 25 cm) insgesamt 805 Bq ^{44m}Sc sowie weitere Ca-Aktivierungsprodukte wie ^{47}Ca , $^{47,48}\text{Sc}$, $^{42,43}\text{K}$ produziert. Die entstandene Aktivität ist jedoch vergleichsweise gering.

7.1.7 β -Dosisabschätzung bei Gewebeaktivierung

Zur Abschätzung der den einzelnen Organen durch die bei der Strahlentherapie induzierten Aktivitäten zugeführten β -Energiedosis kann das MIRD-(Medical Internal Radiation Dose) Konzept dienen. Danach wird zwischen einem Quell- und Zielorgan unterschieden; im Quellorgan befindet sich die Aktivität, die eine Dosis an das Quellorgan selbst sowie an entferntere Zielorgane abgibt. Für die Dosis gilt:

$$D = S \cdot \int_0^{\infty} A(t) dt \quad (7.1)$$

S , angegeben in $\text{Gy} \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s} = \text{Gy}$ (früher $\text{rad} \cdot \mu\text{Ci} \cdot \text{h}$), ist ein nuklid- und organspezifischer Parameter, der für einzelne Aktivitäts-Quell- und Zielorgane in einem Tabellenwerk, bezogen auf den sogenannten "Standard-Referenz-Menschen" (Körpergewicht 70 kg), dokumentiert ist [SNY 74, SNY 75]. Das Integral in (7.1) ist dimensionslos und wird als **kumulierte Aktivität** A_K bezeichnet; es entspricht der Teilchenzahl N der zerfallenen Kerne bzw. (bei β -Strahlern) der Anzahl insgesamt emittierter β -Teilchen.

Wird beispielsweise ein Tumor in unmittelbarer Nähe zur Leber mit einem Protonenstrahl entsprechender Energie so bestrahlt, daß sich die letzten 10 cm (Strahleintritt bis Beamstop) des Strahlpfades im Organ befinden, dann entstehen dort während des 30-minütigen Therapiebetriebs $A_0(^{11}\text{C}) = 320 \text{ MBq/nA } ^{11}\text{C}$, $A_0(^{13}\text{N}) = 110 \text{ MBq/nA } ^{13}\text{N}$ und $A_0(^{15}\text{O}) = 980 \text{ MBq/nA } ^{15}\text{O}$ -Aktivität, die nach Therapieende gemäß dem einfachen Exponentialgesetz $A(t) = A_0 \cdot \exp(-t/t_{1/2})$

* **ln2**) zerfallen. Es wird angenommen, daß die biologische Halbwertszeit für physiologische Transportprozesse sehr viel größer ist als die physikalische; dann hat die Dosis **D** (7.1) den Wert

$$D = S \cdot A_0 \cdot \frac{t_{1/2}}{\ln 2} . \quad (7.2)$$

Daraus ergab sich die mittlere Verweildauer $\tau = A_K/A_0$ ("Residence-Zeit") für die Nuklide ^{11}C , ^{13}N und ^{15}O als $t_{1/2}/\ln 2$ (^{11}C : 29,4 min, ^{13}N : 14,4 min, ^{15}O : 2,9 min). Einsetzen der entsprechenden S-Werte ergab die durch ^{11}C - und ^{15}O -Aktivitäten zugeführten Energiedosen für das Quellorgan Leber selbst sowie für verschiedene Zielorgane. Der Dosisqualitätsfaktor für β - und γ -Strahler beträgt 1, so daß im Falle von ^{11}C , ^{13}N und ^{15}O für die Äquivalentdosis (Tab. 7.2), erzeugt durch Positronen, **1Gy = 1Sv** gilt. Im MIRD-Schema wird die Dosis auf die gesamte Organmasse bezogen. Für die Berechnung bestrahlungsinduzierter Radionuklide ist es jedoch sinnvoll, die Dosis auf die dem Bragg-Peak-Gewebevolumen entsprechende Masse (hier wurde ein kugelsymmetrisches Volumen von $V_G = 4/3 \pi (5 \text{ cm})^3$ postuliert) zu beziehen, so daß man die in Tab 7.2 aufgeführten Dosiswerte erhält. Ferner wurden die $S_{\text{Leber-Leber}}$ -Werte für die drei genannten Nuklide selbst abgeschätzt; unter der Annahme, daß ein Positron seine mittlere Energie $\langle E_{\beta^+} \rangle$ [aus BRW 86] im Lebervolumen V_G vollständig verliert, ergibt sich $S = \langle E_{\beta^+} \rangle / (V_G \cdot \rho_G)$. Dabei wurden γ -Energiedosen vernachlässigt. Die auf beiden Wegen ermittelten Leberdosen sind vergleichbar.

Tab. 7.2: Nach dem MIRD-Schema und für $S = \langle E_{\beta^+} \rangle / V_G$ errechnete, durch ^{11}C -, ^{13}N - und ^{15}O -Aktivitäten zugeführte Äquivalentdosen (in mSv) für das Quellorgan Leber und einige Zielorgane für **5 nA** Therapiestrahlsstromstärke

Nuklid	Leber (MIRD)	Leber (über $\langle E_{\beta^+} \rangle$)	Nieren (bei- de) (MIRD)	Lungen (bei- de) (MIRD)
^{15}O	154	138	5,0	3,5
^{13}N	67	50	1,5	1,5
^{11}C	332	234	14,0	9,0
Summe	553	422	20,5	14,0

Ein Vergleich dieser Werte mit einer Protonenstrahlendosis von **2 Sv** (für p-Energien > 10 MeV beträgt der p-Qualitätsfaktor 1), die im Schnitt dem zu behandelnden Organ bei einer Therapiesitzung appliziert wird [vgl. URI 92], zeigt, daß solche, durch Radionuklidzerfall

verursachten, Strahlendosen nur wenig, etwa 1/4 der Gesamtdosis, zur Belastung des Patienten beitragen.

7.2 Aktivierung des Kollimatorenmaterials

Die Strahlkollimatoren in unmittelbarer Nähe des Patienten bestehen häufig aus Blei oder Messing. Um die Kollimatoraktivierung abzuschätzen, wurde für die drei Nuklide ^{62}Zn ($t_{1/2} = 9,13$ h), ^{67}Ga ($t_{1/2} = 78,3$ h) und ^{54}Mn ($t_{1/2} = 312,2$ d) die unter typischen Therapiebetriebsbedingungen, einmal pro Woche innerhalb von drei Stunden zwei Strahltermine von jeweils 30 min Dauer, produzierte Aktivität bei 400 nA Strahlstrom bei einer Eintrittsenergie von 200 MeV in einer 5 cm dicken Messingschicht nach dem Bildungs- bzw. Zerfallsgesetz berechnet und gegen die Betriebszeit aufgetragen:

1. Bildung des Nuklids bei $\Delta t = 30$ min Bestrahlungsdauer:

$$A_1 = A_\infty \cdot (1 - e^{-\frac{\Delta t}{t_{1/2}} \cdot \ln 2}) \quad (7.3)$$

2. Zerfall während $\Delta t = 2$ h Betriebspause:

$$A_2 = A_1 \cdot e^{-\frac{\Delta t}{t_{1/2}} \cdot \ln 2} \quad (7.4)$$

3. Neubildung bei $\Delta t = 30$ min Bestrahlungsdauer; dabei bleibe A_1 näherungsweise konstant:

$$A_3 = A_2 + A_\infty \cdot (1 - e^{-\frac{\Delta t}{t_{1/2}} \cdot \ln 2}) \quad (7.5)$$

4. Zerfall während der Betriebspause bis zum nächsten Bestrahlungstermin $\Delta t = 168,0$ h nach dem Beginn der ersten Bestrahlung:

$$A_4 = A_3 \cdot e^{-\frac{\Delta t}{t_{1/2}} \cdot \ln 2} \quad (7.6)$$

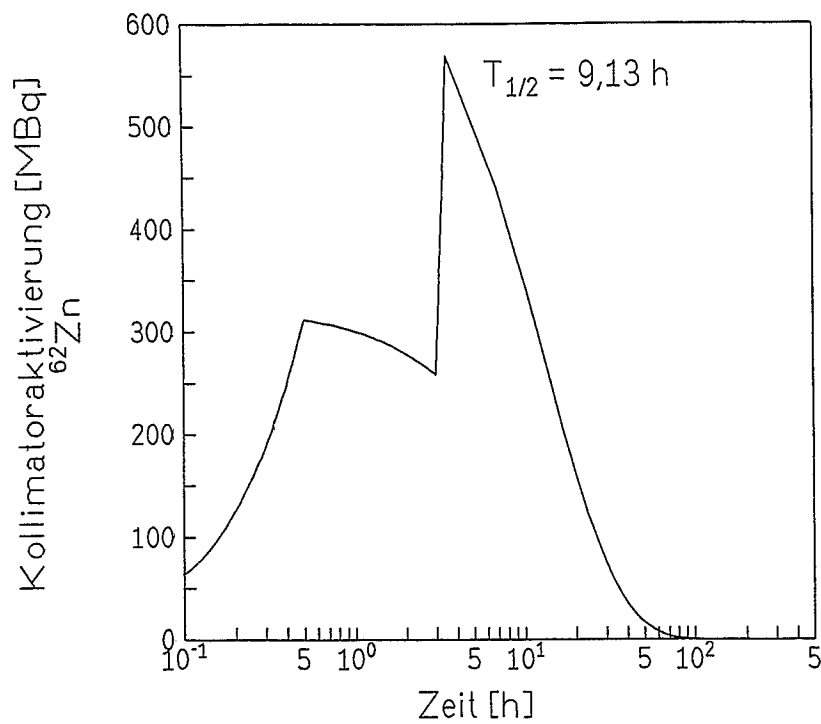


Abb. 7.9: Zeitlicher Verlauf der bei einem 200 MeV-p-Strahlstrom von 400 nA in einem 5 cm dicken (63 m-%Cu, 37 % Zn)-Messingkollimator gebildeten ^{62}Zn -Aktivität

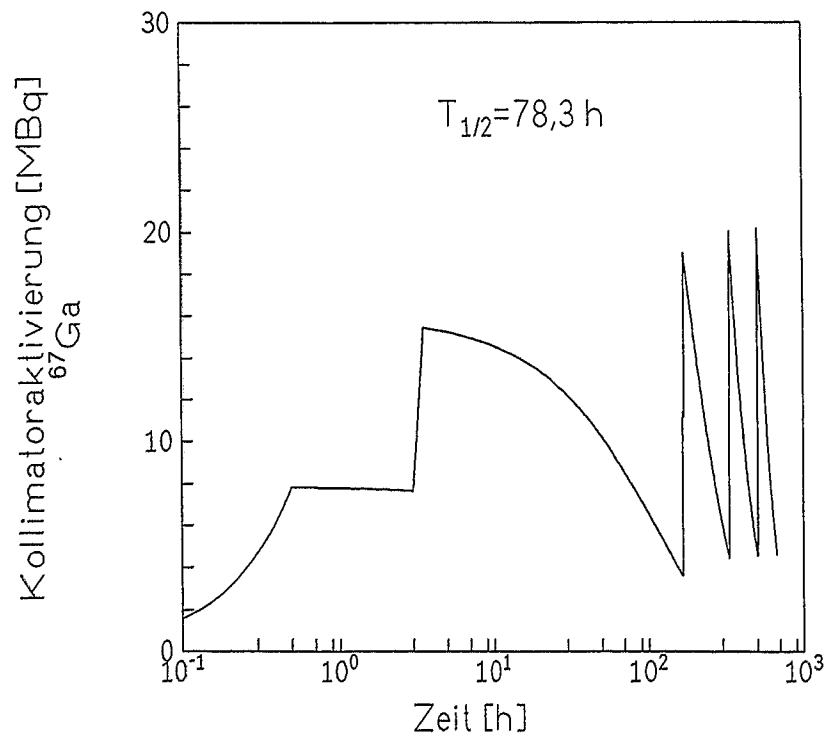


Abb. 7.10: Zeitlicher Verlauf der bei einem 200 MeV-p-Strahlstrom von 400 nA in einem 5 cm dicken (63 m-%Cu, 37 % Zn)-Messingkollimator gebildeten ^{67}Ga -Aktivität

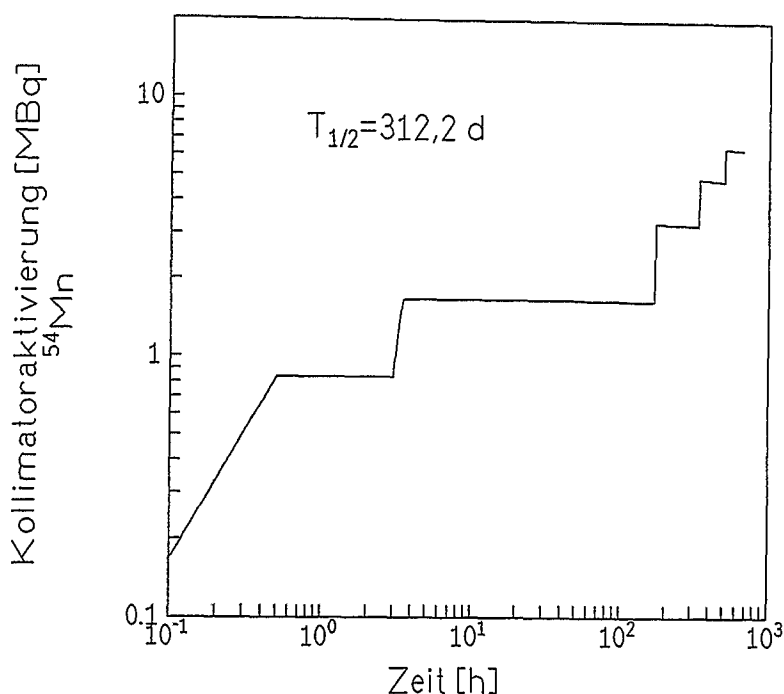


Abb. 7.11: Zeitlicher Verlauf der bei einem 200 MeV-p-Strahlstrom von 400 nA in einem 5 cm dicken (63 m-%Cu, 37 % Zn)-Messingkollimator gebildeten ^{54}Mn -Aktivität

Aus Abb. 7.9 ist erkennbar, daß das relativ kurzlebige ^{62}Zn ($T_{1/2}=9,13 \text{ h}$) nicht im Material akkumuliert und die entstandene Aktivität von etwa 570 MBq bereits nach 80-100 h unter 10 MBq absinkt.

Beim längerlebigen ^{67}Ga ($T_{1/2}=78,3 \text{ h}$) kommt es innerhalb der Betriebspause nicht zu einem fast vollständigen Abklingen der Aktivität (Abb. 7.10). Eine merkliche Akkumulation findet noch nicht statt; Neubildung und Zerfall halten sich in etwa die Waage, und die Aktivität schwankt zwischen 4 und 20 MBq.

^{54}Mn wird aufgrund seiner recht langen Halbwertszeit ($T_{1/2}=312,2 \text{ d}$) im Material allmählich angereichert; die Aktivitäten werden aufaddiert (Abb. 7.11). Allerdings ist die produzierte Aktivität pro Betriebstag mit etwa 1,6 MBq nicht bemerkenswert hoch. Immerhin werden auf diese Weise jährlich (etwa 50 Betriebstage angenommen) ca. 2 mCi ^{54}Mn erzeugt. Ähnlich verhält es sich mit anderen längerlebigen Nukliden wie ^{55}Fe ($T_{1/2}=2,6 \text{ a}$), ^{57}Co (271,3 d) und ^{65}Zn (244 d), so daß diese längerlebigen Nuklide zur Strahlenbelastung des bedienenden Personals wesentlich beitragen; ferner ist die Entsorgung bestrahlter Apparaturteile problematisch.

8. Zusammenfassung

Mit Hilfe der Folienstapel-Aktivierungsmethode wurden Wirkungsquerschnitte für zahlreiche Kernreaktionen von Hochenergieprotonen mit biologisch relevanten Elementen bestimmt. Die Radionuklidaktivitäten wurden γ - und röntgenspektrometrisch ermittelt; in vielen Fällen gelang dies zerstörungsfrei, während für die Messung von ^7Be - und ^{22}Na -Aktivitäten in bestrahlten Nebengruppenmetall-Folien und Nebengruppenmetallsalz-Preßlingen eine radiochemische Abtrennung erforderlich war. Hierzu wurden quantitative Kationen-HPLC-Methoden im analytischen und semipräparativen Maßstab entwickelt, die eine simultane, saubere Abtrennung geträgerter ^7Be - und ^{22}Na -Aktivitäten von störenden Aktivierungsprodukten mit gleichzeitiger Ermittlung der radiochemischen Trennausbeute ermöglichten.

^7Be -Emission

Auf diese Weise konnten zum ersten Mal Wirkungsquerschnitte von $(p, ^7\text{Be})$ - Reaktionen an den Kernen P, S, Cl, Ca, Zn ermittelt werden, bei den ersten vier im Energiebereich von 100 bis 180 MeV und bei Zn bei 134 und 254 MeV. Die Wirkungsquerschnitte liegen im mb-Bereich. Der Prozeß an Fe und Cu wurde im Energiebereich 80-350 MeV untersucht. Für Cu wurden dabei erstmalig Wirkungsquerschnitte im Bereich 100 bis 300 MeV gemessen, die im Wertebereich 0,1-0,7 mb liegen. An Fe wurde die $(p, ^7\text{Be})$ -Kernreaktion erstmalig im Energiebereich 90-180 MeV zusammenhängend untersucht; die Wirkungsquerschnitte betragen 0,22-0,30 mb. Auch an Messing wurde die ^7Be -Emission gemessen; diese materialintegralen ^7Be -Emissionswahrscheinlichkeiten stehen mit den aus den Cu $(p, ^7\text{Be})$ - und Zn $(p, ^7\text{Be})$ -Querschnitten errechenbaren Werten im Einklang.

$^{22,24}\text{Na}$ -Produktion

Die Bildung von ^{22}Na und ^{24}Na aus den Elementen Na, Al, Si, P, S, Cl und Ca wurde im Energiebereich 80-300 MeV untersucht. An Cu konnte mit Hilfe chemischer Trennung ^{22}Na -Emission gemessen werden.

Aktivierungsprodukte mittlerer Kernmassen

Zusätzlich zur Bestimmung der Produkte ^7Be , ^{22}Na und ^{24}Na wurden auch andere Aktivierungsprodukte untersucht. An Fe wurde die Bildung der Radioisotope $^{44\text{m}}\text{Sc}$, ^{47}Sc , ^{48}Sc , ^{48}Cr , ^{51}Cr , ^{48}V , ^{54}Mn durch (p,x) -Prozesse für p-Energien von 80 bis 300 MeV quantifiziert. Teils waren bereits Literaturdaten vorhanden, teils wurden in dieser Arbeit erstmalig Wirkungsquerschnitte für diesen Energiebereich bestimmt. Am Targetelement Cu, das in der Literatur gut untersucht ist, wurden jeweils zwei Datenpunkte von $^{55,56,58}\text{Co}$, $^{52\text{g},54}\text{Mn}$, ^{62}Zn und ^{51}Cr im Energiebereich > 300 MeV

gemessen. Zum $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{47}\text{Sc}$ -Prozeß konnten mehrere Datenpunkte im Bereich 140-250 MeV gefunden werden. Die Bildung von ^{55}Fe wurde röntgenspektrometrisch untersucht. An Zink und Messing wurden erstmalig Wirkungsquerschnitte für die Bildung der Radioisotope $^{55,56,58}\text{Co}$, $^{52g,54}\text{Mn}$, ^{62}Zn und ^{51}Cr im Energiebereich 110-250 MeV bestimmt. Zum ersten Mal wurde auch die Bildung von $^{42,43}\text{K}$, ^{47}Ca , $^{44m,47,48}\text{Sc}$ durch (p,x)-Prozesse an natürlichem Ca mit (100-180) MeV-Protonen untersucht und die Wirkungsquerschnitte ermittelt.

Systematik der Kerndaten

Systematische Betrachtungen der $(p,^7\text{Be})$ -Wirkungsquerschnitte zeigten, daß -anknüpfend an frühere Arbeiten- auch für höhere Protonenenergien (130 und 180 MeV) eine Korrelation zwischen Wirkungsquerschnitt und Kernladungs- bzw. Massenzahl sowie Oberflächen- und Symmetrieparameter des Targetkerns besteht. Die Funktion von Kernladungs- bzw. Massenzahl läßt sich dabei näherungsweise durch eine gebrochenrationale Funktion beschreiben. Auch für die Bildung von ^{22}Na und ^{24}Na ließ sich eine empirische Beziehung finden.

Kurzlebige β^+ -Strahler

Die Bildung der kurzlebigen Positronenstrahler ^{11}C , ^{13}N und ^{15}O aus ^{nat}N und ^{nat}O wurde bei einer nominellen Protonenenergie von 175 MeV untersucht; die gefundenen Wirkungsquerschnitte sind konsistent zu verfügbaren Literaturdaten.

Kernmodellrechnungen

Mit dem Computercode ALICE-IPPE 1996 konnten für einige Aktivierungsprodukte Wirkungsquerschnitte a priori für Energien von der Reaktionsschwelle bis 280 MeV berechnet werden. Bei der Bildung von ^{24}Na aus Kernen der Elemente P, S und Cl sowie von $^{22,24}\text{Na}$ aus Si entsprechen Form und Verlauf der vorhergesagten Anregungsfunktionen dem empirischen Befund, während die Größenordnung in allen Fällen falsch (Abweichungen um Faktoren 2-5) wiedergegeben wird; die ^{22}Na -Bildung aus P, S, Cl wird durch ALICE-IPPE, offenbar aufgrund des größeren Massenunterschiedes zwischen Target- und Produktkern, mit ungenügender Qualität beschrieben: Form der Kurve und Größenordnung der Reaktionsquerschnitte sind nicht im Einklang mit experimentellen Daten. Eine gute Vorhersage in der Form der Anregungsfunktion liefert ALICE-IPPE für die Prozesse $^{nat}\text{N}(p,x)^{11}\text{C}$, $^{nat}\text{O}(p,x)^{11}\text{C}$, ^{15}O und ^{13}N durch die Berücksichtigung der Emission von einfachen Komplexteilchen.

Die Ergebnisse für die Elemente mittlerer Atommasse stimmen bis etwa 100 MeV gut mit experimentellen Daten überein; für Energien oberhalb 100 MeV weichen die theoretischen Querschnitte jedoch um das 2-3-fache vom Experimentellen ab; ein Vergleich mit ALICE-92-

Rechnungen zeigte, daß ALICE-IPPE 1996 bei der Berechnung von Aktivierungsprodukten im mittleren Massebereich keine wesentlichen Verbesserungen bringt

Kollimator- und Gewebeaktivierung

Mit Hilfe der gewonnenen Kernreaktionsdaten ließen sich Aktivierungen und Radionuklidbildungen in Kollimatorenmaterial und menschlichem Gewebe durch Protonen berechnen. Durch Radionuklide zugeführte Gewebe-Energiedosen wurden nach dem MIRD-Schema abgeschätzt; dabei stellte sich heraus, daß diese Radionukliddosen in summa etwa 1/4 der Gesamtstrahlendosis betragen.

Die Aktivierung der Kollimatoren wurde unter der Annahme einer 30-minütigen Bestrahlung eines 5 cm dicken Messingblocks mit einem 400nA-Protonenstrahl exemplarisch für die drei Nuklide ^{62}Zn ($t_{1/2} = 9,13 \text{ h}$), ^{67}Ga ($t_{1/2} = 78,3 \text{ h}$) und ^{54}Mn ($t_{1/2} = 312,2 \text{ d}$) berechnet. Während ^{62}Zn innerhalb weniger Tage nahezu vollständig abklingt, bleiben die Aktivitäten der beiden anderen Produkte bestehen; die ^{67}Ga -Aktivität schwankt zwischen 4 und 20 Mbq, ^{54}Mn wird akkumuliert: Jährlich werden etwa 75 MBq ($\sim 2 \text{ mCi}$) ^{54}Mn im Kollimatorenmaterial erzeugt.

9. Literatur

- AAM 52 Aamodt, R.L., Peterson, V., Philips, R., Phys. Rev. **88** (1952) 739.
- ACD 91 Aced, G., Möckel, H.J.: *Liquidchromatographie*, Verlag Chemie, Weinheim (1991).
- AHU 89 Ahuja, S., *Chemical Analysis: Selectivity and Detectability Optimations in HPLC*, John Wiley & Sons, New York (1989).
- AKI 70 Akima, J. Assc. Comp. Mach. **17(4)** (1970).
- ALB 62 Albouy, M.G., Cohen, J.P., Gusakov, Phys. Lett. **2** (1962) 306.
- ALE 87 Aleksandrov, V.N., Semenova, M.P., Semenov, V.G., At. Energ. **62** (1987) 411.
- ALE 88 Aleksandrov, V.N., Semenova, M.P., Semenov, V.G., At. Energ. **64** (1988) 445.
- ALE 90 Aleksandrov, V.N., Semenova, M.P., Semenov, V.G., VANT.
- ARC 73 Archambeau, J. O., Bennett, G. W., Levine, G. S., IEEE Transactions on Nuclear Science, **20(3)** (1973) 1007.
- AST 90 Austin-Seymour, M., Urie, M., Munzenrider, J., Willett, C., Goitein, M., Verhey, L., Gentry, R., McNulty, P., Koehler, A., Suit, H., Radiother. Onc. **17** (1990) 29.
- BAH 93 Barthmann, D., Drücke, V., Eyrich, W., Filges, D., Hoffmann, W., Klasen, C., Linz, U., Maier, R., Neef, R. D., Paul, N., Schmitz, Th., *Proton Therapy at COSY*, interner Bericht.
- BAK 58 Baker, E., Friedlander, G., Hudis, J., Phys. Rev. **112** (1958) 1319.
- BAR 75 Barrandon. J.N., Debrun, J.L., Kohn, A., Spear, R.H., Nucl. Instr. Meth. **127** (1975) 269.
- BAR 84 Baros, F., Regnier, S., J. Phys. Radium. **45** (1984) 855.
- BAR 87 Barchuk, I.F., Bulkin, V.S., Kuzmenko, V.A. et al, At. Energ. **63** (1987) 30.
- BAT 51 Batzel, R.E., Seaborg, G.T., Phys. Rev. **82** (1951) 607.
- BAT 54 Batzel, R.E., Coleman, G.H., Phys. Rev. **93** (1954) 280.
- BEN 60 Benioff, P.A., Phys. Rev. **119** (1960) 316.
- BEN 75 Bennett, G. W., Goldberg, A. C., Levine, G. S., Guthy, J., Balsamo, J., Archambeau, J. O., Nucl. Instr. Meth. **125** (1975) 333.
- BER 65 Bernas, R., Epherre, M., Gradsztajn, E., Phys. Lett. **15** (1965) 147.
- BER 73 Bertrand, F.E., Peelle, R.W., Phys. Rev. **C8** (1973) 1045.
- BIM 71 Bimbot, R., Gauvin, H., Compt. Rend. **273** (1971) 1054.
- BLA 71 Blann, M., Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 337.
- BLA 72 Blann, M., Phys. Rev. Lett. **28** (1972) 757.
- BLA 73 Blann, M., Nucl. Phys. **A213** (1973) 570.

- BLA 75 Blann, M., *Preequilibrium Decay*, Ann. Rev. Nucl. Sci, **25** (1975) 123.
- BLA 83 Blann, M., Vonach, H.K., Phys. Rev. **C28** (1983) 1475.
- BLE 82 Blessing, G., Weinreich, R., Qaim, S.M., Stöcklin, G.,
Int. J. Appl. Radiat. Isot. **33** (1982) 339.
- BLT 90a Blattmann, H., Coray, A., Pedroni, E., Greiner, R.,
Strahlenther. Onkol. **166** (1990) 45.
- BLT 90b Blattmann, H., Coray, A., Radiother. Oncol. **17** (1990) 17.
- BOD 93a Bodemann, R., Dissertation, Universität Hannover (1993).
- BOD 93b Bodemann, R., Lange, H.-J., Leya, L., Michel, R., Schiek, T., Rösel, R.,
Herpers, U., Hofmann, H. J., Dittrich, B., Suter, M.,
Nucl. Inst. Meth. **B 82** (1993) 9.
- BOO 77 Boone, M. L. M., Lawrence, J. H., Connor, W. G., Morgado, R., Hicks, J. A.,
Brown, R. C., Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. **3** (1977) 65.
- BOR 36 Bohr, N., *Nature*, London, **137** (1936) 344.
- BLO 55 Blosser, H. G., Handley, T.H., Phys. Rev. **100** (1955) 1340.
- BRO 71b Brodzinski, R.L., Rancitelli, L.A., Cooper, J.A., Wogman, N.A., Phys. Rev. **C 4**
(1971) 1257.
- BRU 62a Brun, C., Lefort, M., Tarrago, X., J. Phys. Radium **23** (1962) 371.
- BRU 62b Brun, C., Lefort, M., Tarrago, X., J. Phys. Radium **23** (1962) 167.
- BRW 86 Browne, E., Firestone, R.B., *Tables of Radioactive Isotopes* (Shirley, V.S., Ed.),
Wiley, London (1986).
- CAO 87 Castro, J. R., *Third workshop on heavy charged particles in biology and medicine*,
Ed. Kraft, G., Grundinger, K., GSI Darmstadt, Report 87-11,
ISSN 0171-4546, 1987.
- CAR 58 Caretto, A.A., Hudis, J., Friedlander, G., Phys. Rev. **110** (1958) 1130.
- CAS 56 Cassels, J.M., Proc. Phys. Soc. (London) **A 69** (1956) 495.
- CHD 94 Chadwick, M. B., Blann, M., Young, P. G., Reffo, G., *Model Calculations of
Nuclear Data for Biologically-important Elements*, Nuclear Data for Science and
Technology
(Ed. Dickens, J.K.), American Nuclear Society, Inc., Illinois, (1994) p. 658.
- CLE 61 Clegg, A.B., Foley, K.J., Salmon, G.L., Segel, R.E., Proc. Phys. Soc. (London)
78 (1961) 681.
- CLI 71 Cline, J.E., Nieschmid, E.B., Nucl. Phys. **A 169** (1971) 437.
- CLO 88 Cloth, P., Filges, D., Neef, R.D., Report JUEL-2203, Forschungszentrum Jülich
GmbH (1988).

- COL 55 Coleman, G.H., Tewes, H.A., Phys. Rev. **99** (1955) 288.
- COS 92 Cosgrove, V. P., Aro, A. C. A., Green, S., Scott, M. C., Taylor, G. C., Bonnett, D. E., Kacpersek, A., Rad. Prot. Dosimetr. **44** (1992) 405.
- CRA 56 Crandall, W.E., Millburn, G.P., Pyle, R.V., Birnbaum, W., Phys. Rev. **101** (1956) 329.
- CRE 63 Crespo, V.P., Alexander, J.M., Hyde, E.K., Phys. Rev. **131** (1963) 1765.
- CUM 58 Cumming, J.B., Friedlander, G., Swartz, C.A., Phys. Rev. **111** (1958) 1386.
- CUM 63a Cumming, J.B., Friedlander, G., Hudis, J., Poscanzer, A.M., Phys. Rev. **127** (1963) 950.
- CUM 63b Cumming, J.B., Nucl. Phys. **49** (1963) 417.
- CUM 63c Cumming, J.B., Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. **13** (1963) 261.
- CUM 74 Cumming, J.B., Haustein, P.E., Stoenner, R.W., Phys. Rev. **C 10** (1974) 739.
- CUM 76 Cumming, J.B., Haustein, P.E., Stoenner, R.W., Phys. Rev. **C 14** (1976) 1554.
- DEB 88 Debertin, K., Helmer, R. G., *Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*, North-Holland, Amsterdam, Oxford, New York, Tokyo (1988).
- DIT 90 Dittrich, B., Herpers, U., Lüpke, M., Radiochim. Acta **50** (1990) 11.
- DRA 86 Drasch, G.: Fresenius Z. Analyt. Chem. **325**, 285 (1986).
- DYE 81 Dyer, P., Bodansky, D., Seamster, A.G., Phys. Rev. **C 23** (1981) 1865.
- EPH 71 Epherre, M., Seide, C., Phys. Rev. **C 3** (1971) 2167.
- FAB 96 Faßbender, M., Spellerberg, St., Qaim, S.M., Radiochim. Acta **73** (1996) 39.
- FOL 62 Foley, K.J., Salmon, G.L., Clegg, A.B., Nucl. Phys. **31** (1962) 43.
- FRA 87 Frahne, D., Läubli, M., Zimmermann, G.: GIT Fachz. Lab. **31**, 1167 (1987).
- FRI 54 Friedlander, G., Miller, J.M., Wolfgang, R., Phys. Rev. **94** (1954) 727.
- FRI 55 Friedlander, G., Hudis, J., Wolfgang, R.L., Phys. Rev. **99** (1955) 263.
- FUR 60 Furukawa, M., Ishizaki, Y., Nakano, Y., J. Phys. Soc. Jpn. **15** (1960) 2167.
- FUR 65 Furukawa, M., Kume, S., Ogawa, M., Nucl. Phys. **69** (1965) 362.
- GAD 74 Gadioli, E., Grassistrini, A. M., Lobianco, G., Nuovo Cimento **A 22** (1974) 547.
- GAR 73 Garrett, C. K., Turkevich, A.L., Phys. Rev. **C 8** (1973) 594.
- GAU 62 Gauvin, H., Lefort, M., Tarrago, X., Nucl. Phys. **39** (1962) 447.
- GDM 90 Gademann, G., Hartmann, G. H., Kraft, G., Lorenz W.-J., Wannenmacher, M., Strahlenther. Onkol. **166** (1990) 34.
- GME 30 *Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie: Beryllium*, Verlag Chemie GmbH, Berlin (1930).
- GOE 61 Goebel, K., Harting, D., Kluyver, J.C., Nucl. Phys. **24** (1961) 28.

- GOI 83 Goitein, M., Miller, T., *Planning Proton Therapy of the Eye*,
Med. Phys. **10** (1983) 275.
- GOL 78 Golikov, I.G., Zhukov, M.N., Loschakov, I.I., Ostroumov, V. I.,
Yad. Fiz. **27** (1978) 7.
- GRE 51 Greenberg, D.H., Miller, J.M., Phys. Rev. **84** (1951) 845.
- GRE 85 Greening, J. R., *Fundamentals of Radiation Dosimetry*, Page Bros (Norwich) Ltd.
(1985).
- GRI 66 Griffin, J. J., Phys. Rev. Lett. **17** (1966) 478.
- GRI 79 Grimes, S.M., Haight, R. C., Alvar, K. R., Barshall, H. H., Borchers, R. R., Phys.
Rev. **C 19** (1979) 2127.
- GRU 82 Grutter, A., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **33** (1982) 725.
- GRU 82a Grutter, A., Nucl. Phys. **A 383** (1982) 98.
- GUS 62 Gusakow, M., Ann. Phys. (N.Y.) **7** (1962) 67.
- HAL 61 Haller, I.B., Rudstam, G., J. Inorg. Nucl. Chem. **19** (1972) 1235.
- HAC 90 Nancock, W. S. (Ed.), *High Performance Liquid Chromatography in Biotechnology*,
John Wiley & Sons, New York (1990).
- HAR 71 Harp, G.D., Miller, J.M., Phys. Rev. **C 3** (1971) 1847.
- HAI 81 Haight, R. C., Grimes, S.M., Johnson, R. G., Barshall, H. H., Phys.
Rev. **C 23** (1981) 700.
- HER 86 Herpers, U., *Radiation Detection and Measurement*, Treatise on Analytical
Chemistry, 2nd Ed., Part I, John Wiley & Sons, Inc., New York **14** (1986) 123 .
- HEY 72 Heydegger, H. R., Garrett, C.K., van Ginneken, A., Phys. Rev. **C 6** (1972) 1235.
- HEY 76 Heydegger, H. R., Turkevich, A.L., van Ginneken, A., Walpole, P.H.,
Phys. Rev. **C 14** (1976) 1506.
- HIC 56 Hicks, H.G., Stevenson, P.C., Nervik, W.E., Turkevich, A.L., Phys. Rev. **102**
(1956) 1390.
- HIL 72 Hille, M., Hille, P., Uhl, M., Weisz, W., Nucl. Phys. **A 198** (1972) 625.
- HIN 52 Hintz, N. M., Ramsey, N. F., Phys. Rev. **88** (1952) 19.
- HOD 92 Hodgson, P. E. (Gen. Ed.), *Oxford Studies in Nuclear Physics: Pre-Equilibrium
Nuclear Reactions*, Clarendon Press, Oxford (1992).
- HOG 78 Hogan, J.J., Gadioli, E., Nuovo Cim. **45 A** (1978) 341.
- HOL 77 Holub, R., Fowler, M., Yaffe, L., Zeller, A., Nucl. Phys. **A 288** (1977) 291.
- HON 60 Honda, M., Lal, D., Phys. Rev. **118** (1960) 1618.
- HON 64 Honda, M., Lal, D., Nucl. Phys. **51** (1964) 363.

- HUD 54 Hudis, J., Wolfgang, R., Sugarman, N., Friedlander, G., Phys. Rev. **94** (1954) 775.
- HUD 63 Hudis, J., Dostrovsky, I., Friedlander, G., Phys. Rev. **129** (1963) 434.
- IGN 88 Ignatyuk, A. V., Mihaly, K., Grudzevich, O.T., Bödy, Z.T.: Report INDC(HUN)-025/L (1988).
- IGN 93 Ignatyuk, A. V., Weil, J.L., Raman, S., Kahane, S., Phys. Rev. **C 47** (1993) 1504.
- IWA 82 Iwamoto, A., Harada, K., Phys. Rev. **C 26** (1982) 1821.
- JEN 70 Jenkins, I.L., Wain, A.G., J. Inorg. Nucl. Chem. **32** (1970) 1419.
- JNG 95 Jongen, Y., Laycock, S., Abs, M., Amelia, J.-C., Beeckmann, W., Kleeven, W., Ladeuze, M., Lannoye, G., Leyman, D., Poreye, V., Vandeplassche, D., Zaremba, S., Hurn, T., Nissley, L., Hubbard, E., Heiberger, M., Tabor, M., Silke, C., Tachikawa, T., Sano, M., Takayama, T., Ohtomo, K., Satoh, T., The Proton Therapy System for MGH's NPTC: Equipment Descriptions and Progress Report.
- JON 94 Jones. D. T. L., Schreuder, A.N., Symons, J.E., Yudelev, M., The NAC particle therapy facilities, Hadrontherapy in Oncology, 1994.
- JUN 68 Jung, M., Jacquot, C., Baixeras-Aiguabella, C., Compt. Rend., **B 266** (1968) 1154.
- KIK 68 Kikuchi, K., Kawai, M., *Nuclear Matter and Nuclear Interactions*, North-Holland, Amsterdam (1968).
- KIT 89 Kitwanga, S. W., Leleux, P., Lipnik, P., Vanhorenbeek, J., Phys. Rev. **C 40** (1989) 35.
- KIT 90 Kitwanga, S. W., Leleux, P., Lipnik, P., Vanhorenbeek, J., Phys. Rev. **C 42** (1990) 748.
- KKI 89 Korkisch, J., *Handbook of Ion Exchange Resins: Their Applikation to Inorganic Analytical Chemistry*, CRC Press, Inc., Boca Raton, Florida (1989).
- KOE 88 Koelling, S., Kunze, J., Tauber, C.: Fresenius Z. Analyt. Chem. **332** (1988) 776.
- KON 88 Kondrationok, B., Schwedt, G: Fresenius Z. Analyt. Chem. **332** (1988) 333.
- KON 95a Konobeyev, A.Yu, Lunev, V.P., Shubin, Yu.N., Acta phys.slov. **45** (1995) 705.
- KON 95b Konobeyev, A.Yu, Korovin, Yu. A., Kerntechnik **60** (1995) 4.
- KON 96 Konobeyev, A.Yu, Lunev, V.P., Shubin, Yu.N., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **B 108** (1996) 233.
- KOP 85 Kopecky, P., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **36** (1985) 657.
- KOP 90 Kopecky, P., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **41** (1990) 606.
- KOR 67 Korteling, R. G., Caretto, A. A., J. Inorg. Nucl. Chem. **29** (1967) 2863.
- KOR 70a Korteling, R. G., Caretto, A. A., Phys. Rev. **C 1** (1970) 193.

- KOR 70b Korteling, R. G., Caretto, A. A., Phys. Rev. **C 1** (1970) 1960
- KOZ 88 Kozma, P., Kliman, J., Czech. J. Phys. **B 38** (1988) 1317.
- KRA 90 Kraft, G., Strahlenther. Onkol. **166** (1990) 10.
- LAF 66 Lafleur, M. S., Porile, N. T., Yaffe, L., Can. J. Chem. **44** (1966) 2749.
- LAG 75 Lagarde-Simonoff, M., Regnier, S, Sauvageon, H.,
J. Inorg. Nucl. Chem. **37** (1975) 627.
- LAG 79 Lagunas-Solar, M. C., Jungerman, J. A., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **30** (1979) 25.
- LAG 88 Lagunas-Solar, M. C., Carvacho, O. F., Cima, R. R., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **39** (1988) 41.
- LAV 57 Lavrukhina, A. K., Moskaleva, L. P. Krasavina, L. D., Grechischeva, I. M.,
At. Energ. **3** (1957) 285.
- LAW 57 Lawrence, J. H., Cancer **10** (1957) 795.
- LED 78 Lederer, M., Shirley, V.S. (Editors), *Table of Isotopes*, 7th Ed., John Wiley & Sons,
New York, Toronto, Chichester, Brisbane, (1978).
- LEN 88 Levin, C. V., Gonin, R., Wynchank, S., Int. J. Biomed. Comput. **23** (1988) 33.
- LIE 80 Lieser, K.-H., *Einführung in die Kernchemie*, Verlag Chemie, Weinheim (1980).
- LIN 95 Linz, U., *Ion Beams in Tumor Therapy*, Chapman & Hall, London, New York,
Tokyo (1995).
- LNy 92 Lindsay, S., *High Performance Liquid Chromatography*, John Willey & Sons,
New York (1992).
- LON 75 Larsson, B., *Proc. 7th Int Conf. on Cyclotrons and their Applications*, Birkhäuser,
Basel, 1975, p. 414-418.
- LON 84 Larsson, B., J. Eur. Radiother. **3** (1984) 223.
- LST 90 Linstadt, D., Castro, J., Char, D., Decker, M., Ahn, D., Petti, P., Nowakowski, V.,
Quivey, J., Phillips, Th., Int. J. Rad. Onc. Biol. Phys. **19** (1990) 613.
- LUN 79 Lundqvist. H., Malmborg, P., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **30** (1979) 33.
- LÜP 93 Lüpke, M., Dissertation, Universität Hannover (1993).
- MAY 94 Mayer-Kuckuk, Th., Kernphysik: Eine Einführung, 6. Aufl., Stuttgart: Teubner
(1994).
- MAR 51 Marquez, L., Phys. Rev. **81** (1951) 953.
- MAR 52 Marquez, L., Phys. Rev. **86** (1952) 405.
- MAR 58 Markowitz, S.S., Rowland, F.S., Friedlander, G., Phys. Rev. **112** (1958) 1295.
- MAR 73 Marmier, P., *Kernphysik 1*, Verlag der Fachvereine an der ETH Zürich,
Zürich (1973).

- MEA 51a Meadows, J. W., Holt, R. B., Phys. Rev. **83** (1951) 47.
- MEA 66 Measday, D. F., Nucl. Phys. **78** (1966) 476.
- MER 80 Merkel, M., Münzel, H., Nucl. Phys. **A 333** (1980) 173.
- MER 81 Merkel, M., Münzel, H., Radiochim. Acta **29** (1981)
- MEH 88 Mehta, M. K., Schmidt, J. J. (Eds.), *Workshop on Applied Nuclear Theory and Nuclear Model Calculations for Nuclear Technical Application*, Trieste, Italy, World Scientific, Singapore, New Jersey, London, Hong Kong (1988).
- MEY 92 Meyer, V. R., *Praxis der Hochleistungs-Flüssigkeitschromatographie*, Otto Salle Verlag, Frankfurt a.M. (1992).
- MIC 79 Michel, R., Brinkmann, G., Weigel, H, Herr, W., Nucl. Phys. **A 322** (1979) 40.
- MIC 80 Michel, R., Brinkmann, G., J. Rad. Chem. **59** (1980) 467.
- MIC 84 Michel, R., Stück, R., , J. Geophys. Res. **B 89** (1984) 673.
- MIC 85 Michel, R., Peiffer, F., Stuck, R., Nucl. Phys. **A 441** (1985) 617.
- MIL 92 Mills, S.J., Steyn, G.F., Nortier, F.M., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **43(8)** (1992) 1019.
- MIS 55 Miskel, J.A., Perlman, M. L., Friedlander, G., Miller, J. M., Phys. Rev. **98** (1955) 1197A.
- MIY 73 Miyano, K., Phys. Soc. Jpn. **34** (1973) 853.
- MNT 91 Montelius, A., Blomquist, E., Naeser, P., Brahme, A., Carlsson, J., Carlsson, A.-C., Graffmann, S., Grusell, E., Hallén, S., Jakobsson, P., Jung, B., Larsson, B., Nilsson, B., Rikner, G., Russell, K. R., Svensson, R., Acta Oncol. **30(6)** (1991) 739.
- MUS 88 Musiol, C., Ranft, J., Reif, R., Seeliger, D., *Kern- und Elementarteilchenphysik*, VCH, Weinheim (1988).
- MST 94 McMaster, M. C., *HPLC- A Practical User's Guide*, VCH Publishers, Inc., New York, Weinheim, Cambridge (1994).
- NEU 63 Neuzil, E.F., Lindsay, R.H., Phys. Rev. **131** (1963) 1697.
- NEU 92 Neumaier, B., Diplomarbeit, Universität zu Köln (1992).
- NEU 94 Neumaier, B., Rösch, F., Qaim, S. M., Stöcklin, G., Radiochim. Acta **65** (1994) 1.
- NGU 61 Nguyen, L. D., Comt. Rend. **253** (1961) 2919
- NOR 91 Nortier, F.M., Mills, S.J., Steyn, G.F., Appl. Radiat. Isot. **42(4)** (1991) 353.
- OON 86 Orton, C. G., *Radiation Dosimetry*, Plenum Press, New York (1986).
- ORT 76 Orth, C.J., O'Brien, H.A., Schillaci, M.E., J. Inorg. Nucl. Chem **38** (1976) 13.
- PAN 48 Panofsky, W. K. H., Phillips, R., Phys. Rev. **74** (1948) 1732.

- PAR 60a Parikh, V., Nucl. Phys. **18** (1960) 628.
- PER 60 Perilov, H. A., Lozhkin, O. V., Shamov, V. P., Usp. Fiz. Nauk **60** (1960) 3.
- POR 64 Porile, N. T., Tanaka, S., Phys. Rev. **135** (1964) B122.
- POS 71 Poskanzer, A. M., Butler, G. W., Hyde, E. K., Phys. Rev. **C 3** (1971) 882.
- PRO 57 Prokoshkin, Ju. D., Tiapkin, A. A., JETP **32** (1957) 177.
- QAI 76 Qaim, S.M., Stöcklin, G., Nucl. Phys. **A257** (1976) 233.
- QAI 79 Qaim, S.M., Ollig, H., Blessing, G.: Radiochim. Acta **26**, 59 (1979).
- QAI 80 Qaim, S.M., Klapdor, H. V., Reiss, H., Phys. Rev. **C 22** (1980) 1371.
- QAI 82 Qaim, S.M., Wölfle, R., Liskien, H., Phys. Rev. **C25** (1982) 203.
- QAI 85 Qaim, S.M., Wölfle, R., Phys. Rev. **C 32** (1985) 305.
- QAI 86 Qaim, S.M., Wölfle, R., Liskien, H., Phys. Rev. **C 43** (1986) 489.
- QAI 91 Qaim, S.M., Sisterson, J.M., *Working Group on Intermediate Energy Nuclear Data for Medical Application in Intermediate Energy*, Nuclear Data for Applikation (Kocherov, Ed.), IAEA, Report INDC (NDS)-245, p. 187
- QAI 92 Qaim, S.M., Uhl, M., Molla, N. I., Liskien, H., Phys. Rev. **C 46** (1992) 1398.
- QAI 95a Qaim, S.M., Radiochim. Acta **70/71** (1995) 163.
- QAI 95b Qaim, S.M., Uhl, M., Rösch, F., Szelecsényi, F., Phys. Rev. **C 52** (1995) 733.
- RAI 74 Raisbeck, G. M., Yiou, F., Phys. Rev. **C 9** (1974) 1385.
- RAY 64 Rayudu, G. V. S., Can. J. Chem. **42** (1964) 1149.
- RAY 68 Rayudu, G. V. S., J. Inorg. Nucl. Chem. **30** (1968) 2311.
- REE 65 Reeder, P. L., J. Inorg. Nucl. Chem. **27** (1965) 1879.
- REI 88 Reiffenstuhl, S., Bonn, G.: Fresenius Z. Analyt. Chem. **332**, 130 (1988).
- REM 63 Remsberg, I. P., Miller, J. M., Phys. Rev. **130** (1963) 2069.
- RIB 73 Ribansky, I., Oblozinsky, P., Phys. Lett. **B 45** (1973) 318.
- RSW 87 Rassow, J., *Physikalisch-methodische Grundlagen der Strahlentherapie*, Strahlentherapie, E. Scherer (Hrsg.), Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1987).
- RUD 52 Rudstam, G., Stivenson, P. C., Folger, R. L., Phys. Rev. **87** (1952) 358.
- RUT 79 Ruth, T.J., Wolf, A.P., Radiochim. Acta **26** (1979) 26.
- SCÄ 88 Schäfer, J.: GIT Fachz. Lab **32**, 221 (1988).
- SAH 60 Sah, L.C., Thesis, Preprint UCRL 9394 California (1960).
- SAT 83 Sato, N., Iwamoto, A., Harada, K., Phys. Rev. **v. C 28** (1983) 1527.
- SCH 79 Schoen, N. C., Orlov, McDonald, R.J., Phys. Rev. **C 20** (1979) 88.
- SCH 87 Schneider, A.J., Sisterson, J.M., Koehler, A.M., Nucl. Instr. Meth. **B29** (1987) 271.
- SCH 93 Scholten, B., Dissertation, Universität zu Köln (1993).

- SCH 94 Scholten, B., Qaim, S. M., Stöcklin, G., *Radiochim. Acta* **65** (1994) 81.
- SCH 96 Scholten, B., Qaim, S. M., priv. Mitteilung (1996).
- SCK 95 Schiek, Th., Dissertation, Universität zu Köln (1995).
- SCR 95 Schreuder, A.N., Jones, D. T. L., Symons, J. E., Fulcher, T., Kiefer, A., National Accelerator Centre, PO Box 72, Faure, South Africa.
- SCW 82 Schwedt, G.: *Chromatographische Praxis in der anorganischen Analyse*, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York (1982).
- SCW 90 Schwedt, G., Schaper, H.-H.: *Fresenius Z. Analyt. Chem.* **336**, 415 (1990).
- SHE 68 Sheffey, D. W., Williams, I. R., Fulmer, C. B., *Phys. Rev.* **172** (1968) 1094.
- SHU 95 Shubin, Yu.N., Lunev, V.P., Konobeyev, A.Yu, Dityuk, A.I., *Cross-Section Data Library MENDL-2 to Study Activation and Transmutation of Materials Irradiated by Nucleons of Intermediate Energies*, Report INDC(CCP)-385 Distrib.: G (IAEA Report), Vienna, Austria (1995).
- SHU 96 Shubin, Yu.N., Lunev, V.P., ALICE-IPPE 1996 Code, Private Übermittlung an S.M. Qaim und M. Faßbender (1996).
- SHU 96a Shubin, Yu.N., Lunev, V.P., priv. Mitteilung (1996).
- SIS 94 Sisterson, J. (Ed.), *Particles* **13** (1994).
- SMH 95 Smith, A. R., *Radiation Therapy Physics*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1995).
- SNY 94 Snyder, W.S., Cook, M.J., Nasser, E.S., Karhausen, L.R., Parry Howells, G., Tipton, I.H.: *Report of the Task Group on Reference Man*, ICRP Rep. 23, Pergamon Press, Oxford (1974).
- SNY 95 Snyder, W.S., Ford, M.R., Warner, G.G., Watson, S.B., *mird Pamphlet No. 11*, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.
- STA 71 Stapleton, G. B., Thomas, R. H., *Nucl. Phys.* **A 175** (1971) 125.
- STE 90 Steyn, G. F., Mills, S.J., Nortier, F. M., *Appl. Radiat. Isot.* **41** (1990) 315.
- SUI 90 Suit, H.D., Goitein, M., Munzenrider, J., Verhey, L., Urie, M., Gragoudas, E., Koehler, A., Gottschalk, B., Sisterson, J., Tatsuzaki, H., Miralbell, R., *Strahlenther. Onkol.* **166** (1990) 40.
- SYM 57 Symonds, J., Warren, J., Young, J., *Proc. Phys. Soc. (London)* **A 70** (1957) 824.
- SZE 95 Szelecsenyi, F., Boothe, Th. E., Takacs, S., Tarkanyi, F., Tavano, E., persönliche Mitteilung an S.M. Qaim (1995).
- TAM 61 Tamers, M. A., Delibrias, G., *Compt. Rend.* **B 253** (1961) 1202.
- TAN 59 Tanaka, S., Furukawa, M., *J. Phys. Soc. Jpn.* **14** (1959) 1269.
- TAR 90 Tárkányi, F., Szelecsenyi, F., Kovacs, Z., Sudar, S., *Radiochim. Acta* **50** (1990) 19.

- TOB 71 Tobaillem, J., de Lassus St. Genies, C.H., Leveque, L., CEA-N-1466 (1) (1971).
- UHL 86 Uhl, M., IRK Progress Report 1986 (E. Wild and G. Dimiger, Editors), Wien, 1986, S. 26.
- URI 84 Urie, M., Goitein, M., Wagner, M., Phys. Med. Biol. **29** (1984) 553.
- URI 92 Urie, M. M., Fullerton, B., Tatsuzaki, H., Birnbaum, B. S., Suit, H. D., Phil, D., Convery, M. P. H., Skates, S., Goitein, M., Int. J. Rad. Oncol. Biol. Phys. **23** (1992) 27.
- VAL 63 Valentin, L., Albouy, G., Cohen, J. P., Gusakow, M., Phys. Lett. **7** (1963) 163.
- VAL 64 Valentin, L., These, Institute de Physique Nucleaire, Orsay 1964.
- VAL 65 Valentin, L., Nucl. Phys. **62** (1965) 81.
- VOG 89 Vogel, H., *Strahlendosis und Strahlenrisiko in der bildgebenden Diagnostik*, Landsberg, München, Zürich: ecomed (1989).
- WAG 82 Wagner, M. S., Med. Phys. **9** (1982) 749.
- WAL 73 Walton, J. R., Yaniv, A., Heymann, D., J. Geophys. Res. **78** (1973) 6428.
- WAL 76 Walton, J. R., Heymann, D., Yaniv, A., J. Geophys. Res. **81** (1976) 5689.
- WAM 92 Wambersie, A., Gregoire, V., *Nuclear Data Relevant for Particle Radiation Therapy Today and Tomorrow*, Nuclear Data for Science and Technology (Ed. Qaim, S.M.), Springer Verlag, Berlin Heidelberg, (1992) p.579.
- WAR 54 Warshaw, S. D., Swanson, R. A., Rosenfeld, A. H., Phys. Rev. **95** (1954) 649.
- WEI 37 Weißkopf, V., Phys. Rev. **52** (1937) 295.
- WEI 40 Weißkopf, V., Ewing, D. H., Phys. Rev. **57** (1940) 472..
- WEI 91 Weiß, J.: *Ionenchromatographie*, Verlag Chemie, Weinheim (1991).
- WHI 94 White, R.M. , Chadwick, M.B., Chandler, W.P., *Advances in Nuclear Data and ALL-particle Transport for Radiation Oncology*, Nuclear Data for Science and Technology (Ed. Dickens, J.K.), American Nuclear Society, Inc., Illinois, (1994) p.1023.
- WIS 46 Wilson, R. R., *Radiological Use of Fast Protons*, Radiology **47** (1946) 487.
- WOL 90a Wölfle, R., Qaim, S.M., Radiochim. Acta. **50** (1990) 185.
- WOL 90b Wölfle, R., Qaim, S.M., Liskien, H., Wídera, R., Radiochim. Acta. **50** (1990) 5.
- WLS 66 Williamson, C. F., Boujot, J. P., Picard, J., *Tables of Range and Stopping Power of Chemical Elements for Charged Particles of Energy 0.5 to 500 MeV*, Rapport CAE-R 3042 (1966).
- YAN 88 Yan, D., Jingan, Zh., Schwedt, G.: Fresenius Z. Analyt. Chem. **331**, 601 (1988).
- YAN 89 Yan, D., Jingan, Zh., Schwedt, G.: Fresenius Z. Analyt. Chem. **335**, 687 (1989).
- YIO 69 Yiou, F., Seide, C., Bernas, R., J. Geophys. Res. **74** (1969) 3447.

10. Danksagungen

Ich danke Gott für Seine Fürsorge und Segnung, durch die Er mir mein Studium und diese Doktorarbeit möglich gemacht hat.

Ganz herzlich bedanken möchte ich mich bei meinem Lehrer, Herrn Priv.-Doz. Dr. S.M. Qaim, für das interessante Thema, für die ständige Hilfestellung und für das freundliche, von Vertrauen geprägte Verhältnis, das mir das Erlernen des selbständigen, wissenschaftlichen Arbeitens leicht machte.

Den Direktoren des Institutes für Nuklearchemie, Herrn Prof. Dr. G. Stöcklin, Herrn Priv.-Doz. Dr. S.M. Qaim (während der Übergangszeit vom Juli 1995 bis März 1996) und Herrn Prof. Dr. H.H. Coenen danke ich für die Unterstützung und die finanzielle Doktorandenförderung.

Herrn Dr. B. Scholten danke ich für die kollegiale, freundliche Zusammenarbeit, für seine Hilfestellung bei den experimentellen Arbeiten sowie für die entspannenden Teestunden zur Nachmittagszeit.

Bei Herrn Dr. Yu. N. Schubin möchte ich mich ganz herzlich für die Bereitstellung des Programms ALICE-IPPE, für die freundliche Einweisung und Anleitung zu den Kernmodellrechnungen und die Nachhilfe in theoretischer Kernphysik bedanken.

Herrn St. Spellerberg sei vielmals gedankt für die zahlreichen Nachtdienste beim Ausmessen von Bestrahlungsproben; ihm und seiner Frau sei auch für die herzliche Gastfreundschaft gedankt.

Herrn L. Rütten bin ich sehr dankbar für seine ständige Hilfsbereitschaft bei apparativen Problemen und für die stets offene Werkstatt.

Den Herren Dr. U. Herpers und Dr. P. Malmberg sei gedankt für die Durchführung der Bestrahlungsexperimente in Uppsala und Saclay.

Für den kollegialen Zusammenhalt und die Hilfsbereitschaft bedanke ich mich bei meinen Kollegen, den Herren Dr. B. Neumaier, Dipl.-Chem. F.-O. Denzler und Dipl.-Chem. A. Klein.

Ferner gilt mein Dank allen anderen namentlich nicht genannten Institutsangehörigen für ihre Hilfsbereitschaft und ein hervorragendes Arbeitsklima.

Forschungszentrum Jülich



Jül-3348
Februar 1997
ISSN 0944-2952