

**Wirkungsquerschnitte zur Bildung von Aktivierungsprodukten in
Wechselwirkung von Protonen mit biologisch relevanten Elementen
und Kollimatormaterialien im Energiebereich bis 200 MeV**

Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität zu Köln

vorgelegt von

Kerstin Kettern

aus Wintrich

Druckerei der Forschungszentrum Jülich GmbH

2004

Berichtersteller:

Prof. Dr. Dr. h.c. S.M. Qaim
Prof. Dr. H.H. Coenen

Tag der mündlichen Prüfung:

19. Mai 2004

Die vorliegende Arbeit wurde in der Zeit von März 2001 bis März 2004 am Institut für Nuklearchemie (INC) der Forschungszentrum Jülich GmbH unter Anleitung von Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. Qaim durchgeführt.

Abstract

For estimating the activation of human tissue and beam collimator material during proton therapy, excitation functions were measured by the stacked-foil technique for proton induced reactions on carbon, nitrogen, oxygen, lead and titanium. The energy region extended up to 200 MeV.

In this work we concentrated on the formation of the short-lived positron emitters ^{11}C ($T_{1/2} = 20.38$ min) and ^{13}N ($T_{1/2} = 9.96$ min) in the interactions of intermediate energy protons with the light mass elements C, N and O. The product activity was measured non-destructively via γ -ray spectrometry. A careful decay curve analysis of the positron annihilation radiation was invariably performed. In order to understand the reaction mechanism, the experimental results were compared with theoretical data obtained using the modified hybrid nuclear model code ALICE-IPPE for intermediate energies.

Cross sections for the $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x)^{45}\text{Ca}$, $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x)^{49}\text{V}$ and $^{\text{nat}}\text{Pb}(p,x)^{204}\text{Tl}$ reactions could be measured for the first time. Radiochemical separation methods were developed to obtain thin samples. The radioactivity was measured via low level β^- -counting and x-ray spectrometry. Theoretical model calculations using ALICE-IPPE were performed also for the reactions and a comparison with the experimental data was carried out.

The extra dose caused by the activation products ^{11}C and ^{13}N to muscle, adipose and bone tissue was calculated. It was found that the contribution of the positron emitters to the activation of human tissue generated by therapeutic proton beams is not negligible. The dose generated in the treated tumour volume amounts to about 35 % of the irradiation dose.

Activation estimates were also done for the beam collimator material lead and titanium. During one year the level of long-lived activation products accumulated in the collimators amounts to 17 MBq for titanium and 65 MBq for lead (for a 200 MeV proton beam of 2 nA). The radiological effects of the accumulated activities are negligible.

Kurzzusammenfassung

Es wurden Anregungsfunktionen einiger protoneninduzierter Reaktionen an Kohlenstoff, Stickstoff, Sauerstoff, Blei und Titan mit Hilfe der Folienstapeltechnik im Energiebereich bis 200 MeV gemessen. Anhand der ermittelten Wirkungsquerschnitte wurde die Aktivierung von menschlichem Gewebe und der Strahlkollimatoren abgeschätzt.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die Bildung der kurzlebigen Positronenstrahler ^{11}C ($T_{1/2} = 20,38$ min) und ^{13}N ($T_{1/2} = 9,96$ min), die bei der Bestrahlung der biologisch relevanten Elemente C, N und O mit Protonen intermediärer Energien entstehen, bestimmt. Die Aktivität wurde zerstörungsfrei γ -spektrometrisch untersucht. Dabei wurde durch die Analyse der Zerfallskurven der Vernichtungsstrahlung die Aktivität des einzelnen β^+ -Emitters bestimmt. Um die Reaktionsmechanismen zu verdeutlichen wurden Kernmodellrechnungen mit dem Rechencode ALICE-IPPE für intermediäre Energie durchgeführt.

Die Wirkungsquerschnitte für die $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x)^{45}\text{Ca}$, $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x)^{49}\text{V}$ und $^{\text{nat}}\text{Pb}(p,x)^{204}\text{Tl}$ Reaktionen konnten zum ersten Mal gemessen werden. Zur Herstellung dünner Messpräparate wurden radiochemische Trennmethode ausgearbeitet. Zur Bestimmung der Radionuklidaktivitäten wurde β^- -Zählung und Röntgenspektrometrie eingesetzt. Die ermittelten Daten wurden ebenfalls mit den Ergebnissen der theoretischen Rechnungen verglichen.

Die zusätzliche Dosis durch die kurzlebigen Positronenstrahler ^{11}C und ^{13}N wurde für Muskel-, Fett- und Knochengewebe ermittelt. Die Berechnungen zeigen, dass der Beitrag der Positronenemitter nicht vernachlässigbar ist. Bei der Bestrahlung von Tumorgewebe entstehen im bestrahlten Volumen bis zu 35 % der eingesetzten Strahlendosis.

Aktivitätsberechnungen wurden ebenfalls für die Kollimatormaterialien Blei und Titan durchgeführt. Während eines Jahres werden im Titankollimator 17 MBq an langlebigen Aktivierungsprodukten akkumuliert und in einem Bleikollimator reichern sich 65 MBq an (bei einer Energie von 200 MeV und einem Strahlstrom von 2 nA). Der radiologische Effekt dieser akkumulierten Aktivitäten ist relativ gering.

<u>1</u>	<u>EINLEITUNG</u>	<u>1</u>
1.1	KERNMODELLE	1
1.2	KERNREAKTIONEN	2
1.2.1	TEILCHENEMISSION BEI KERNREAKTIONEN	5
1.3	ENERGETIK VON KERNREAKTIONEN	6
1.4	KERNDATEN	7
1.4.1	REAKTIONSWIRKUNGSQUERSCHNITT UND ANREGUNGSFUNKTION	8
1.4.2	DIFFERENTIELLE UND INTEGRALE AUSBEUTE	10
1.5	ENERGIEVERLUST GELADENER TEILCHEN IN MATERIE	11
1.6	RADIOCHEMISCHE TRENNUNGEN	13
1.7	AKTIVITÄTSBESTIMMUNG	14
1.8	BESTIMMUNG DES TEILCHENFLUSSES	15
1.9	PROTONENTHERAPIE	15
1.9.1	GESCHICHTE DER HADRONENTHERAPIE	15
1.9.2	ALLGEMEINE EIGENSCHAFTEN DER HADRONENTHERAPIE	16
1.9.3	AKTIVIERUNG DES MENSCHLICHEN GEWEBES BEI DER PROTONENTHERAPIE	18
1.9.4	ENERGIESPEKTREN VON PROTONENTHERAPIEBESTRAHLUNGEN	19
1.10	DOSIMETRIE	21
1.10.1	DOSISBEGRIFFE	21
1.10.2	ÄUßERE STRAHLENEINWIRKUNG	23
1.10.3	INNERE STRAHLENEINWIRKUNG	24
<u>2</u>	<u>PROBLEMSTELLUNG</u>	<u>25</u>
<u>3</u>	<u>EXPERIMENTELLER TEIL</u>	<u>27</u>
3.1	BESTRAHLUNGEN	27
3.1.1	TARGETMATERIALIEN	27
3.1.2	BESTRAHLUNGSEXPERIMENTE	27
3.1.3	BESTRAHLUNGSPARAMETER	31
3.1.4	ENERGIEDEGRADATION	31
3.2	AKTIVITÄTSBESTIMMUNG	32
3.2.1	γ -SPEKTROMETRIE	32

3.2.2	RÖNTGENSPEKTROMETRIE	34
3.2.2.1	⁴⁹ V-STANDARD ZUR BESTIMMUNG DER SELBSTABSORPTION	36
3.2.3	β-ZÄHLUNG	37
3.2.3.1	DURCHFLUSSPROPORTIONALZÄHLER	37
3.2.3.1.1	⁴⁵ Ca-STANDARD ZUR BESTIMMUNG DER SELBSTABSORPTION	38
3.2.3.1.2	²⁰⁴ Ti-STANDARD ZUR BESTIMMUNG DER SELBSTABSORPTION	38
3.2.3.2	FLÜSSIGSZINTILLATIONSZÄHLUNG	39
3.3	BESTIMMUNG DES PROTONENFLUSSES	40
3.4	BESTIMMUNG VON KERNREAKTIONS DATEN	44
3.4.1	ABSOLUTE AKTIVITÄT	44
3.4.2	WIRKUNGSQUERSCHNITT	47
3.4.3	BETRACHTUNG DER MESSUNSICHERHEITEN	48
3.5	CHEMISCHE TRENNUNGEN	49
3.5.1	TRENNUNG Ti/V/Ca	49
3.5.1.1	NACHWEIS VON ⁴⁵ Ca	54
3.5.1.2	NACHWEIS VON ⁴⁹ V	54
3.5.2	TRENNUNG Pb(II) UND Ti(I)	55
3.5.2.1	NACHWEIS VON ²⁰⁴ Ti DURCH BESTIMMUNG DER MAXIMALEN β-ENERGIE DURCH ABSORPTIONSMESSUNGEN	59
4	<u>KERNMODELLRECHNUNGEN</u>	61
4.1	DER RECHENCODE ALICE-IPPE	61
4.1.1	PARAMETERWAHL	61
4.1.2	MITTLERE REAKTIONSWIRKUNGSQUERSCHNITTE	62
5	<u>EXPERIMENTELLE ERGEBNISSE UND VERGLEICH MIT DER THEORIE</u>	64
5.1	WIRKUNGSQUERSCHNITTE ZUR BILDUNG DER KURZLEBIGEN POSITRONENEMITTER ¹¹ C UND ¹³ N	64
5.1.1	TARGETELEMENT KOHLENSTOFF	65
5.1.2	TARGETELEMENT STICKSTOFF	67
5.2	AKTIVIERUNGSPRODUKTE AUS DEN KOLLIMATORMATERIALIEN	71
5.2.1	TARGETELEMENT TITAN	73

5.2.1.1	DIE $^{nat}\text{Ti}(p,x)^{45}\text{Ca}$ -REAKTION	73
5.2.1.2	DIE $^{nat}\text{Ti}(p,x)^{49}\text{V}$ REAKTION	74
5.2.2	TARGETELEMENT BLEI	75
<u>6</u>	<u>AKTIVIERUNGS- UND DOSISABSCHÄTZUNG</u>	<u>77</u>
6.1	GEWEBEAKTIVIERUNG	77
6.1.1	ENERGIEDEGRADATION	77
6.1.2	BILDUNG KURZLEBIGER POSITRONENEMITTER	79
6.1.3	PROTONENDOSIMETRIE	82
6.1.4	BERECHNUNG DER AKTIVITÄT BEI DER GEWEBEAKTIVIERUNG	83
6.1.5	DOSISBERECHNUNG	87
6.2	AKTIVIERUNG DES KOLLIMATORMATERIALS	92
6.2.1	LANGLEBIGE AKTIVIERUNGSPRODUKTE VON TITAN	96
6.2.2	LANGLEBIGE AKTIVIERUNGSPRODUKTE VON BLEI	100
6.2.3	DOSISLEISTUNG	105
<u>7</u>	<u>ZUSAMMENFASSUNG</u>	<u>106</u>
<u>8</u>	<u>LITERATUR</u>	<u>109</u>

1 Einleitung

1.1 Kernmodelle

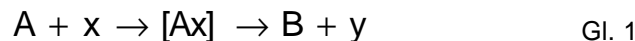
Zur Beschreibung von Kernphänomenen werden verschiedene Kernmodelle herangezogen, da sich nicht alle experimentellen Befunde auf ein einheitliches Modell zurückführen lassen. Das sogenannte **Tröpfchenmodell** vergleicht den Atomkern mit einem Flüssigkeitstropfen, dessen Moleküle durch van der Waalsche Kräfte zusammengehalten werden. Dieses Modell erlaubt die Deutung einer Reihe von Kerneigenschaften, wie z.B. die nahezu konstante Dichte der Atomkerne, die nahezu konstante Bindungsenergie pro Nukleon, die Instabilität schwerer Kerne, etc. Es entspricht außerdem der von Bohr entwickelten Vorstellung vom Compoundkern [1] bei Kernreaktionen. Das Tröpfchenmodell unterscheidet sich deutlich von dem Modell der unabhängigen Teilchen, dem **Schalenmodell**. Beim Schalenmodell wird nur eine schwache Wechselwirkung der Nukleonen angenommen. Es beschreibt die Beobachtung, dass bei bestimmten Protonen- und Neutronenzahlen besonders stabile bzw. besonders viele stabile Nuklide auftreten. Das Schalenmodell deutet also die sog. magischen Zahlen. Diese Beobachtungen führten zu der Auffassung, dass die Protonen und Neutronen innerhalb der Kerne in Schalen angeordnet sind, ähnlich wie die Elektronen in der Atomhülle. Mit 2, 8, 20, 50, 82 und 126 Teilchen sind die Schalen aufgefüllt. Bei höheren Anregungsenergien erweist sich das Modell der unabhängigen Teilchen als völlig unzureichend. Ein Teilchen, das auf einen Kern auftritt, tritt i.a. mit allen Nukleonen des Kerns in Wechselwirkung; die Anregungsenergie wird aufgeteilt. Für die Behandlung von Kernreaktionen und Streuprozessen bis zu Energien von etwa 100 MeV ist das **optische Modell** nützlich. Man nimmt dabei an, dass der Kern einerseits eine gewisse Durchlässigkeit für ein einfallendes Teilchen besitzt, dass andererseits aber die Nukleonen des Kerns mit dem einfallenden Teilchen in Wechselwirkung treten. Da in der Optik die Wechselwirkung von Licht mit Materie in ähnlicher Weise beschrieben wird, spricht man vom optischen Modell [cf. 2]. Im **Fermigasmodell** bewegen sich die Nukleonen frei, vergleichbar mit einem idealen Gas, in einer Potentialmulde, die durch eine Wandung von einem höheren 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 [cf. 3].

1.2 Kernreaktionen

Eine Kernreaktion ist i.a. ein binuklearer Prozess, der unter der Einwirkung eines anderen Teilchens stattfindet. Zur Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Projektil und Targetkern werden verschiedene Reaktionsmechanismen herangezogen. Abhängig von der Energie der Geschossteilchen unterscheidet man bei Kernreaktionen verschiedene Prozesse:

Ist die Energie eines Geschosses zunächst zu niedrig, um in den Targetkern einzudringen, so werden **Streuprozesse** beobachtet. Diese Prozesse beruhen auf Wechselwirkungen der jeweiligen elektrostatischen Felder der Projektile und der Targetkerne. Sind die Energien der beiden beteiligten Teilchen nach dem Stoß unverändert, liegt eine **elastische Streuung** vor. Wird ein Teil der Energie des Projektils auf den Targetkern übertragen, so spricht man von einer **inelastischen Streuung**. Bei der Übertragung von Energie auf den Targetkern sind dabei nur solche Beträge erlaubt, die der Differenz zweier Kernenergieniveaus entsprechen [cf. 2].

Bei nicht zu hohen Geschossenergien entsteht zunächst ein hoch angeregter Zwischenkern $[Ax]$ der dann unter Emission eines kleineren Produktteilchens y in den Produktkern B zerfällt.



Dabei ist es durchaus möglich, dass auch mehrere Produktteilchen emittiert werden. Im allgemeinen besitzt der angeregte Zwischenkern mehrere Optionen zur Nukleonenemission. Man spricht von mehreren zur Verfügung stehenden Reaktionskanälen. Im Niederenergiebereich bis zu 100 MeV unterscheidet man bei binuklearen Kernreaktionen zwischen den folgenden Kernreaktionstypen:

Bei Energien bis zu 25 MeV finden bevorzugt **Compoundkern-Reaktionen** statt. Nach dem Compoundkern-Modell [1, 4] verteilt sich die Projektilenergie zunächst gleichmäßig innerhalb von ca. 10^{-15} s auf den sogenannten Compoundkern, woraufhin es zu einer Verdampfung von Nukleonen mit maxwellschen verteilten Energien der verdampften Teilchen kommt. Der Compoundkern kann viele verschiedene Konfigurationen (Anregungszustände) annehmen, deren Bildungswahrscheinlichkeit durch die Gesetze der Statistik bestimmt sind. Der Compoundkern kann auf verschiedenen Wegen abreagieren. Da die Energie auf alle

Nukleonen im Kern statistisch verteilt ist, erfolgt die Emission von Nukleonen symmetrisch um 90° [2].

Bei Projektilenergien oberhalb 10 MeV treten **Precompoundeffekte** in Erscheinung. Oberhalb von 30 MeV liefern sie einen wesentlichen Beitrag zur Kernreaktion. Hierbei kommt es zur Emission von Teilchen, bevor die Energie des Projektils gleichmäßig auf alle Nukleonen des Targetkerns verteilt ist. Die Teilchenemission verläuft relativ zur Projektilbahn leicht vorwärtsgerichtet und mit 10^{-18} s schneller als die Compoundkern-Reaktion, jedoch langsamer als die direkten Prozesse. Die Beschreibung solcher Prozesse geschieht mit Hilfe des sog. Excitonen-Modells [5], wonach der Kern als Fermi-Gas mit Einteilchenzuständen betrachtet wird, die im Grundzustand bis zur Fermi-Energie ε_F (maximales Besetzungspotential) besetzt sind. Angeregte Kernzustände lassen sich dann eindeutig durch die Zahl angeregter Teilchen (particles = p) plus Löcher (holes = h), (p+h = Excitonen) sowie die Anregungsenergie E charakterisieren, wobei alle Zustände mit gleichem $n = p+h$ als gleichwahrscheinlich angesehen werden (Abb. 1). Drehimpulserhaltung wird nicht berücksichtigt. Das Projektilteilchen tritt mit dem Targetkern in Wechselwirkung, es entsteht zunächst eine kleine Anzahl Excitonen (Teilchen-Loch-Paare). Schwache Restwechselwirkungen führen zu einer Umverteilung der Excitonen auf den Einteilchenzuständen sowie zur Geburt oder Vernichtung von Teilchen-Loch-Paaren, d.h. es erfolgen Übergänge mit $\Delta n = 0, \pm 2$. Eine anfänglich quasifreie Bewegung eines eingeschlossenen Nukleons im Kern 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 erfolgt der Übergang zu $n = 3p2h = 5$. 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, der sog. Präequilibrium-Emission, PE [3].

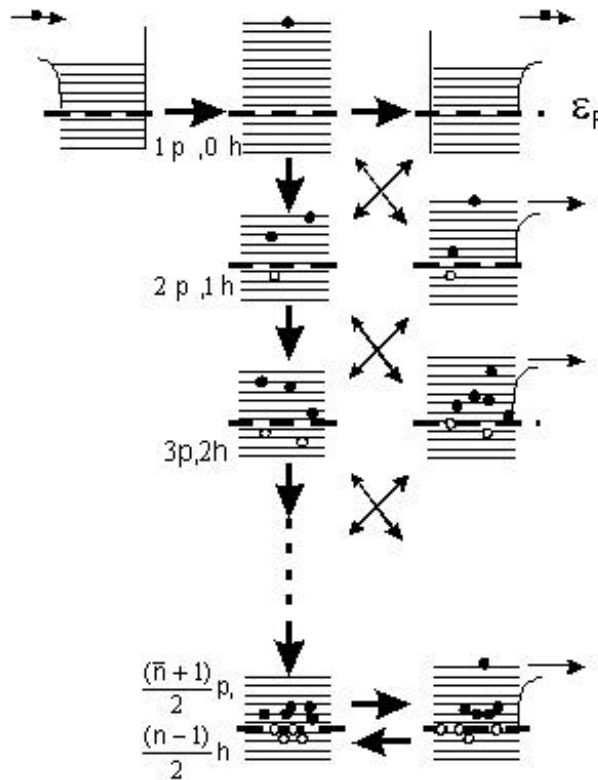


Abb. 1 Schematische Darstellung des Excitonenmodells [3].

Direktprozesse finden bevorzugt bei Projektilenergien oberhalb 50 MeV und leichten Targetkernen ($A < 30$) statt. Sie sind durch sehr kurze Wechselwirkungsauern von 10^{-23} bis 10^{-22} s gekennzeichnet. Es erfolgt ein direkter Übergang von dem Eingangsin den Ausgangskanal. Die Energie des Projektils wird auf ein einzelnes oder auf mehrere Nukleonen übertragen. Es bildet sich kein intermediär angeregter Kern. Man unterscheidet „Knock-out“-Reaktionen, Transferreaktionen und Ladungsaustauschreaktionen. Ein Beispiel für eine „Knock-out“-Reaktion ist ${}^7\text{Li}(n,t){}^4\text{He}$. Bei einer Transferreaktion werden ein oder mehrere Nukleonen vom Geschossteilchen auf den Targetkern oder auch umgekehrt übertragen. Die kinetische Energie der emittierten Teilchen ist höher als beim Verdampfungsprozess. Eine zeitliche Abfolge verschiedener Kernreaktionen ist in Abb. 2 dargestellt.

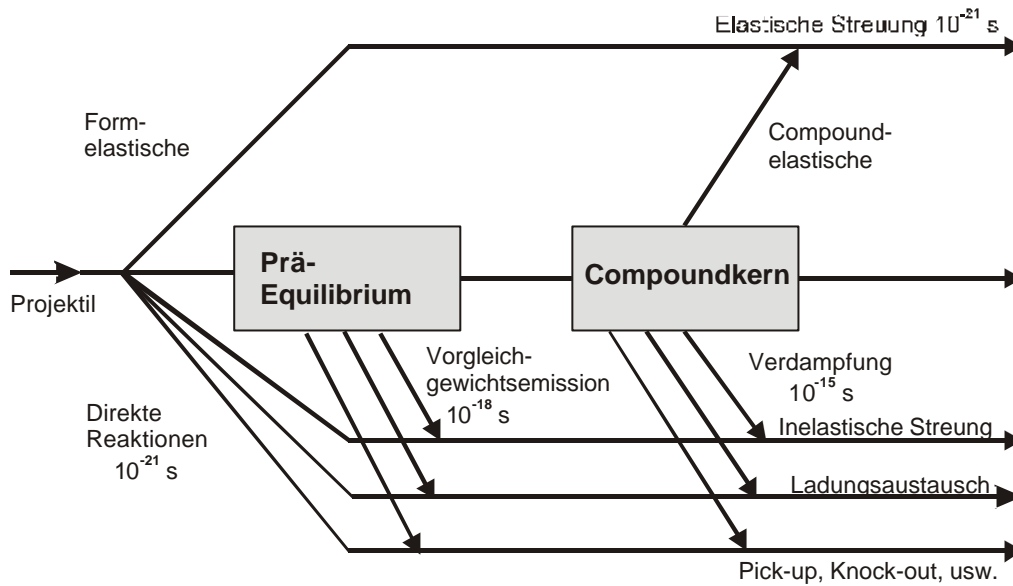


Abb. 2 Zeitliche Abfolge verschiedener Kernreaktionen [6].

Bei Energien oberhalb von 100 MeV kommt es im Targetkern zu elastischen Stößen zwischen dem Geschossteilchen und einzelnen Nukleonen, die dann in Vorwärtsrichtung eine intranukleare Kaskade auslösen. Als Folge verdampfen mehrere Nukleonen bzw. es kommt zur Abspaltung komplexer Nukleonengruppen. Ein solcher Prozess wird als **Spallation** bezeichnet.

1.2.1 Teilchenemission bei Kernreaktionen

Bei der Wechselwirkung von Neutronen und beschleunigten leichten Ionen mit Kernen kommt es neben elastischen und inelastischen Streuprozessen und radiativem Einfang auch zur Emission von Nukleonen sowie komplexen Teilchen wie ${}^2\text{H}$, ${}^3\text{H}$, ${}^3\text{He}$, ${}^4\text{He}$, ${}^6\text{Li}$, ${}^7\text{Be}$, etc. Wegen der steigenden Coulombbarriere nimmt die Wahrscheinlichkeit der Komplexeilchenemission mit steigender Ladung des Targetkerns ab. Allerdings wächst die Emissionswahrscheinlichkeit mit steigender Projektilenergie. Die ausführlichsten Studien existieren zur ${}^4\text{He}$ -Emission, die durch Compound- und Precompound-Modelle angemessen beschrieben wird. Gelegentlich müssen direkte Prozesse berücksichtigt werden. Wegen der sehr starken Bindungsenergie im ${}^4\text{He}$ -Ion, ist die α -Emission vergleichbar mit der Emissionen von Nukleonen, besonders bei Wechselwirkungen mit leichten Targetkernen. Deuteronenemission wird hauptsächlich durch direkte Prozesse verursacht. Im Falle der ${}^3\text{H}$ -Emission spielen sowohl Compound- als auch Direktprozesse eine wichtige Rolle und die ${}^3\text{He}$ -Emission wird vor allem durch direkte Wechselwirkungen bedingt.

Studien zu Komplexeilchenemissionen sind sowohl für das Verständnis von Kernstrukturen als auch für praktische Anwendungen von Bedeutung. Reaktionen wie (d,α) , $({}^3\text{He},t)$, $({}^3\text{He},\alpha)$, etc. geben Auskunft über die Population von Hochspin-Zuständen des Produktkerns. On-line Spektralmessungen geben Auskunft über die Energie- und Winkelverteilung der emittierten Teilchen. Radiochemische Untersuchungen, Massenspektrometrie und die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) stellen off-line Methoden zur Identifizierung der Restkerne dar [7].

1.3 Energetik von Kernreaktionen

Ob eine Kernreaktion ablaufen kann, hängt zunächst einmal von ihrer Energietönung ab. Als Q-Wert bezeichnet man die bei einer Kernreaktion freiwerdende Energie ΔE , die der Reaktionsenthalpie einer chemischen Reaktion entspricht. Anders als bei chemischen Reaktionen bedeutet aber ein positiver Q-Wert, dass die Reaktion exoergisch ist und bei endoergischen Reaktionen (negativer Q-Wert) muss die Anregungsenergie durch die kinetische Energie des Projektils aufgebracht werden, damit es zur Auslösung der Kernreaktion kommt. Der Q-Wert wird definiert als die Differenz der kinetischen Energien E der beteiligten Teilchen vor und nach der Kernreaktion. Für eine einfache binukleare Kernreaktion $\mathbf{A(x,y)B}$ gilt:

$$Q = E_B + E_y - (E_A + E_x) \quad \text{Gl. 2}$$

Aus der Einstein'schen Masse-Energie-Beziehung $E=mc^2$ folgt aus Gleichung 2:

$$\Delta E=Q=(m_B+m_y-m_A-m_x) \cdot c^2 \quad \text{Gl. 3}$$

Setzt man die Nuklidmassen in atomaren Einheiten (u) ein, dann ist

$$Q \text{ (in MeV)} = (m_B+m_y-m_A-m_x) \cdot 931,5 \quad \text{Gl. 4}$$

Ein Teil der Geschossenergie wird entsprechend des Impulserhaltungssatzes bei der Emission eines Teilchens auf den Produktkern übertragen, so dass für die Kernreaktion nur die verminderte Anregungsenergie zur Verfügung steht. Diese mindestens erforderliche Schwellenenergie E_S berechnet sich nach:

$$E_S = -Q \left(1 + \frac{M_x}{M_A} \right) \quad \text{Gl. 5}$$

Bei Kernreaktionen, bei denen geladene Teilchen entweder in den Kern eindringen, oder von ihm emittiert werden, liegt eine weitere Reaktionsbarriere vor. Die

geladenen Teilchen müssen die Coulombsche Abstoßung überwinden. Die Potentialschwelle beträgt näherungsweise:

$$E_C = 1,2 \frac{Z_A Z_x}{A_A^{1/3} + A_x^{1/3}} \text{ MeV} \quad \text{Gl. 6}$$

Die zur Auslösung der Kernreaktion nötige Energie, die Reaktionsschwelle, setzt sich aus der Schwellenenergie und der Coulombenergie zusammen. Quantenmechanische Tunneleffekte ermöglichen jedoch Kernreaktionen auch unterhalb dieser Reaktionsschwelle.

1.4 Kerndaten

Unter „Kerndaten“ versteht man alle Daten, die die Eigenschaften der Kerne oder deren Wechselwirkungen beschreiben. Man unterscheidet zwischen Kernstrukturdaten, Kernzerfallsdaten und Kernreaktionsdaten.

Die **Kernstrukturdaten** befassen sich hauptsächlich mit den qualitativen Eigenschaften der Kerne, wie z.B. den Energien, Spin und Parität der Niveaus sowie der Übergangswahrscheinlichkeit und der Niveaudichte.

Zu den **Kernzerfallsdaten** zählen die Halbwertszeit, die unterschiedlichen Zerfallsarten und die Zerfallsenergien.

Kernreaktionsdaten beschreiben die Wechselwirkung zwischen zwei Kernen.

In Abb. 3 ist als Beispiel das Zerfallsschema von ^{13}O gezeigt. Neben der Art der Umwandlung ist die Energie der Strahlung angegeben. Des Weiteren sind außer den Grundzuständen von ^{12}C und ^{13}N auch einige angeregte Zustände eingezeichnet sowie der Kernspin und die Parität. Aus dem Energiediagramm kann man die Energiebeträge, die beim Übergang eines Nuklids vom angeregten Zustand in den Grundzustand frei werden direkt ablesen. Zusätzlich zu den Übergangsenergien sind die Übergangswahrscheinlichkeiten aufgeführt. Die Niveaudichte ist beim ^{13}N , als Beispiel für einen leichten Kern, gering. Die Energieniveaus sind weit voneinander getrennt ($> 1 \text{ MeV}$).

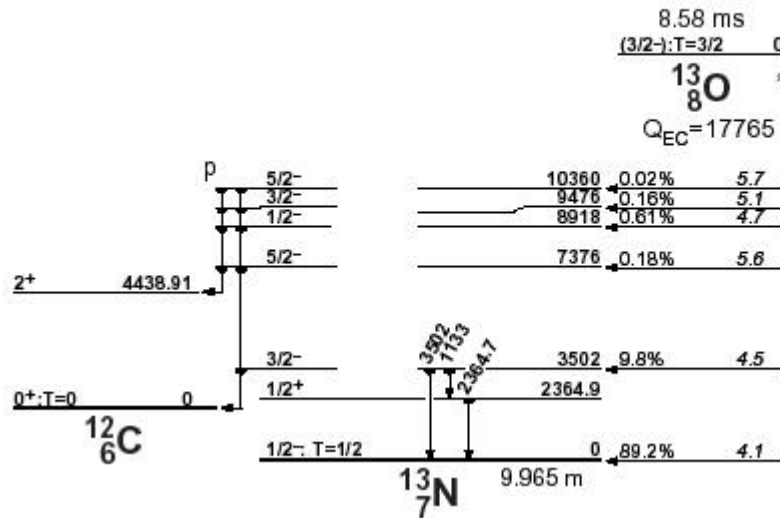


Abb. 3 Zerfallsschema von ^{13}O [8]. Angegeben sind die angeregten Niveaus des ^{13}N , die beim Zerfall von ^{13}O bevölkert werden.

Wichtige Parameter bei Kernreaktionsstudien sind die Reaktionsschwelle, der Reaktionswirkungsquerschnitt, die Energie- und Winkelverteilung der emittierten Teilchen, die differentiellen und integralen Daten und die Anregungsfunktionen.

1.4.1 Reaktionswirkungsquerschnitt und Anregungsfunktion

Der Wirkungsquerschnitt ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit der Wechselwirkung der einfallenden Teilchen mit den Nukleonen des Targetkerns. Anschaulich kann man sich den Wirkungsquerschnitt folgendermaßen vorstellen (Abb. 4):

Ein Strahl der Teilchen x trifft mit der Flussdichte ϕ auf ein Target, das die Atome des Nuklids A enthält. Nimmt man an, dass es zur Kernreaktion kommt, wenn das Projektil die Zielscheibe, also den Nuklidkern trifft, dann ist die Reaktionsausbeute proportional zur Fläche der Zielscheibe.

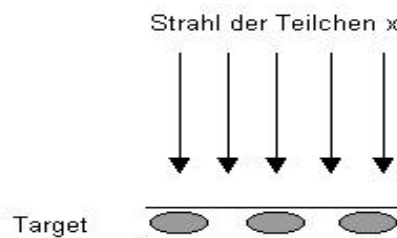


Abb. 4 Zur Erläuterung des Wirkungsquerschnitts einer Kernreaktion [2].

Der Durchmesser der Atomkerne ist von der Größenordnung 10^{-14} m, ihr Querschnitt somit von der Größenordnung 10^{-28} m². Diese Fläche wird als Einheit für den Wirkungsquerschnitt σ gewählt und als 1 barn bezeichnet ($1 \text{ barn} = 10^{-28} \text{ m}^2$). Das anschauliche Bild, in dem die Atome als Zielscheiben gedacht sind, kann nur als eine sehr grobe Näherung angesehen werden, weil die Kernkräfte und die Coulombsche Wechselwirkung mit geladenen Teilchen nicht berücksichtigt sind. Die experimentell ermittelten Wirkungsquerschnitte weichen oft um Größenordnungen von dem Querschnitt der Atomkerne ab. Außerdem findet man für verschiedene Reaktionen an demselben Nuklid oft sehr unterschiedliche Werte. Der Wirkungsquerschnitt bezieht sich jeweils auf eine bestimmte Reaktion, z. B. auf eine (n, γ)- oder eine (n,p)-Reaktion mit einem bestimmten Nuklid A.

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

$$\frac{dN}{dt} = \sigma\phi HN \quad \text{Gl. 7}$$

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

$$\frac{dN}{dt} = \sigma\phi HN_A - \lambda N_B \quad \text{Gl. 8}$$

Die Lösung der Differentialgleichung führt zur Aktivierungsgleichung:

$$N_B(t) = \frac{\sigma\phi HN_A}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad \text{Gl. 9}$$

Für die Aktivität des Nuklids B ergibt sich direkt:

$$A = -\frac{dN_B}{dt} = \lambda N_B = \sigma\phi N_A (1 - e^{-\lambda t}) \quad \text{Gl. 10}$$

Der Wirkungsquerschnitt ist abhängig von der Energie der Geschossteilchen. Die Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte bezeichnet man als **Anregungsfunktion**. Die Aktivierungsgleichung in der obigen Form (Gl. 10) gilt demnach streng genommen nur für eine diskrete Energie. Das bedeutet, dass bei der exakten Messung von Wirkungsquerschnitten nur sogenannten Targets verwendet werden sollten, die nur einen vernachlässigbaren Teil der Geschossenergie absorbieren

(„dünne“ Targets). Da Neutronen keine Coulombsche Abstoßung erfahren, können sie im Bereich niedriger Energie mit hohem Wirkungsquerschnitt reagieren. Je höher die Geschwindigkeit des Neutronen ist, desto kürzere Zeit halten sie sich in der Nähe eines Kerns auf und desto geringer sollte der Wirkungsquerschnitt sein; d.h. er sollte umgekehrt proportional zur Geschwindigkeit der Neutronen abfallen ($1/v$ -Gesetz). Diese Bedingung ist bei niedriger Energie weitgehend erfüllt. Bei höherer Energie treten Maxima auf (Resonanzstellen). An diesen Resonanzstellen entspricht die kinetische Energie der Neutronen jeweils bestimmten bevorzugten Anregungsenergien; die Kernreaktion findet deshalb mit besonders guten Ausbeuten statt [2]. Geladene Teilchen müssen aber gewisse kinetische Energien mitbringen um die Coulomb-Abstoßung zu überwinden und Kernreaktionen auszulösen. Die Anregungsfunktion protoneninduzierter Kernprozesse weist deshalb je nach Energie verschiedene Maxima für einzelne konkurrierende Reaktionen auf und fällt dann asymptotisch ab.

1.4.2 Differentielle und integrale Ausbeute

Die geladenen Geschossteilchen verlieren beim Eintritt in das Targetmaterial Energie. Da der Wirkungsquerschnitt ebenfalls energieabhängig ist, muss die Radionuklidaktivität zunächst differentiell, d.h. theoretisch für ein infinitesimales Energieintervall dE , praktisch für ein hinreichend kleines Intervall ΔE 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 .

Bei der Bestrahlung von dünnen Targets kann ein Energieverlust der Projektilteilchen beim Durchgang durch das Target vernachlässigt werden. Für die Aktivitätsausbeute bei zeitlich konstantem Teilchenstrahl gilt die Aktivierungsgleichung (Gl. 10).

Bei der Bestrahlung von „dicke Targets“ kann der Energieverlust der Projektilteilchen nicht mehr vernachlässigt werden. Die Ausbeute (Y_i) lässt sich bei zeitlich konstantem Teilchenstrahl nach folgender Gleichung berechnen [9]:

$$Y_i = \frac{N_A}{A} H \cdot \phi \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_1}^{E_2} \left(\frac{dE}{dpx} \right)^{-1} \sigma(E) dE \quad \text{Gl. 11}$$

Die Zahl der Targetkerne wird in diesem Ausdruck durch die mittlere Atommasse A , die AVOGADRO-Zahl N_A und die Isotopenhäufigkeit H ausgedrückt. E_1 und E_2 sind die Ein- bzw. Austrittsenergie der geladenen Teilchen, der Ausdruck $(dE/d(\rho x))^{-1}$ bezeichnet das sogenannte Massenbremsvermögen (differentielle Reichweite im Target) mit der Einheit $(\text{MeV}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{g}^{-1})$, wobei ρ die Stoffdichte ist und x die zurückgelegte Wegstrecke der geladenen Teilchen.

Bei bekannter Anregungsfunktion lässt sich die Ausbeute eines dicken Targets grafisch ermitteln, indem die Funktion in viele kleine Energieintervalle unterteilt wird und für jedes Intervall die für die entsprechende Energiedegradierung erforderliche Anzahl der Targetkerne ermittelt wird. Bei Annahme eines mittleren Wirkungsquerschnittes in einem Intervall lässt sich die Aktivität mittels der Aktivierungsgleichung berechnen, wobei meistens ein Teilchenfluss von $1\ \mu\text{A}$ und eine Bestrahlungsdauer von $1\ \text{h}$ angenommen wird. Die Summierung der Aktivitäten der einzelnen Energieintervalle führt dann zur Gesamtausbeute für einen interessierenden Energiebereich $E_2 \rightarrow E_1$. Die Einheit der Ausbeute ist $[\text{Bq}/\mu\text{Ah}]$.

Die differentielle Reichweite im Target $(dE/d\rho x)^{-1}$ kann aus Tabellenwerken entnommen werden. Die integrale Ausbeute ist damit eine wichtige Größe zur Beurteilung eines Radionuklidproduktionsprozesses, da sich mit ihr die gesamte zu erwartende Menge an dem gewünschten Isotop in einem dicken Target berechnen lässt [9].

1.5 Energieverlust geladener Teilchen in Materie

Die Geschossteilchen verlieren beim Eintritt in das Targetmaterial Energie. Dabei übertragen sie durch Stoßprozesse ihre kinetische Energie auf das Medium. Zum großen Teil sind dies Wechselwirkungen mit den Hüllenelektronen, was zur Ionisation der Atome führt. Gleichzeitig kann es durch Coulomb-Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld des Atomkerns auch zu Streuungen kommen, so dass der Teilchenstrahl von seiner ursprünglichen Richtung abweicht. Zusätzlich treten besonders bei Elektronen und Positronen Strahlungsverluste in Form von Bremsstrahlung auf, die abgegeben wird, wenn das Teilchen im Coulombfeld des Kerns oder der Elektronen abgebremst wird. Dieser Prozess ist stark material- und energieabhängig und wächst annähernd linear mit der Energie und quadratisch mit

der Ladungszahl Z des Mediums an. Der Energieverlust beim Durchdringen von Materie wird durch die Gleichung von Bethe [10, 11] und Bloch [12] beschrieben.

Näherungsweise gilt:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right) = \frac{z^2 e^4 n_e}{4\pi \epsilon_0^2 v^2 m_e} \left\{ \ln \frac{2m_e v^2}{\langle E_B^{(e)} \rangle} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right\} \quad \text{Gl. 12}$$

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

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

Die Elektronendichte n_e kann über die Ordnungszahl Z und die Atomdichte N_V oder über die Avogadro'sche Zahl N_A , die Atommasse A und die Dichte ρ ausgedrückt werden:

$$n_e = N_V Z = \frac{Z}{A} \rho N_A \cong (0,4 \dots 0,5) \cdot \rho \cdot N_A \quad \text{Gl. 13}$$

Der spezifische Energieverlust nach Gl. 12 ist also proportional der Stoffdichte ρ des Bremsmaterials. Damit ist der Energieverlust $-[dE/d(\rho x)]$ pro Wegeinheit ρx im Absorber annähernd für alle Stoffe konstant, unabhängig von deren Zusammensetzung oder Aggregatzustand [cf. 3]. Abb. 5 zeigt experimentelle spezifische Energieverluste für Protonen in Luft und Blei in einem breiten Energiebereich und im Vergleich dazu den theoretischen Verlauf entsprechend

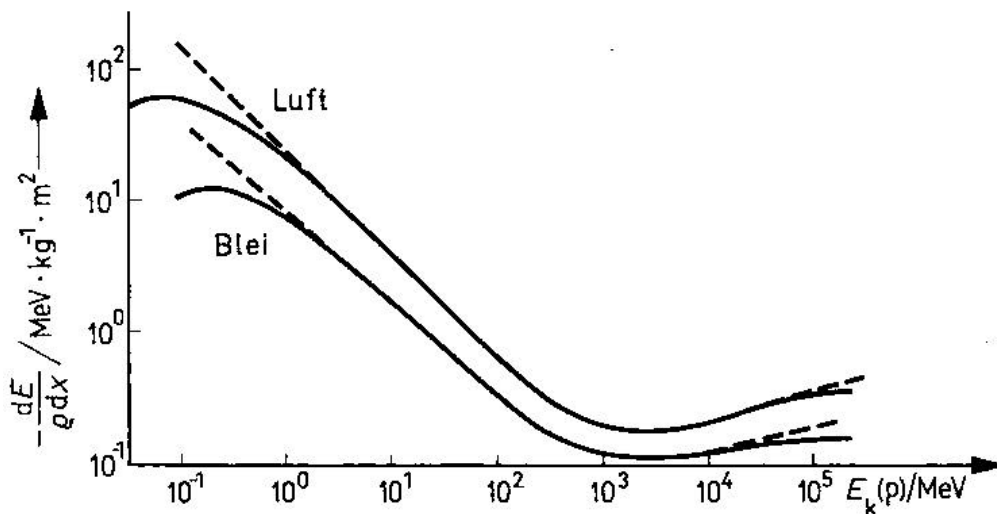


Abb. 5 Spezifischer Energieverlust für Protonen in Luft und Blei in Abhängigkeit von der Protonenenergie; gestrichelte Kurve – theoretischer Verlauf nach Gl. 12 [3].

Gl. 12. Absorptionskurven für Stoffe mit $7 < Z_{\text{eff.}} < 82$ müssen zwischen den beiden dargestellten Kurven liegen.

Die von Williamson et al. [13] modifizierte Gleichung berücksichtigt ferner die Verminderung der mittleren Projektilladung bei niedrigen Teilchenenergien durch Rekombination, sowie die Nichtteilnahme der inneren Hüllenelektronen am Stoßprozess. Williamson et al. sowie Sternheimer [14] entwickelten daraus eine Gleichung, auf der das institutseigene Computerprogramm STACK beruht. Mit Hilfe dieses Programms kann der Energieverlust in Materie berechnet werden. Der Energieverlust aus der „STACK-Berechnung“ wurde mit den Tabellen von Janni [15] verglichen. Des weitern wurde die Reichweite von Protonen in Materie mit dem Programm „PSTAR“ von Berger et al. [16], das u.a. auf den Tabellen von Ziegler et al. [17] basiert berechnet. Auch hier zeigte ein Vergleich mit der Gleichung von Williamson und Sternheimer keine Abweichungen außerhalb der angenommenen Unsicherheiten.

1.6 Radiochemische Trennungen

Radiochemische Trennungen bei Kernreaktionsstudien sind erforderlich bei Untersuchungen von Kernprozessen mit kleinen Ausbeuten, bei der Suche nach kurzlebigen Produkten und der Herstellung von geeigneten Messpräparaten. Kriterien für gute radiochemische Trennungen sind hohe Dekontamination von radioaktiven Verunreinigungen und eine hohe chemische Reinheit und Ausbeute. Dabei muss die Trennung schnell, einfach und reproduzierbar sein.

Häufig verwendete radiochemische Trennmethoden sind u.a. Mitfällung, Solventextraktion, chromatographische Verfahren, Verflüchtigungsmethoden, usw.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Ionenaustauscherchromatographie zur Trennung von Kationen in wässrigen Systemen angewandt. Die Chromatographie ist ein physikalisch-chemisches Verfahren zur analytischen und präparativen Trennung gelöster oder gasförmiger Verbindungen. Die chromatographische Trennung beruht darauf, dass eine mobile (bewegliche) Phase über eine stationäre (unbewegliche) Phase wandert und dabei die zu trennenden Substanzen mit unterschiedlichen Wanderungsgeschwindigkeiten transportiert. Besteht die stationäre Phase aus einem Ionenaustauscher, so spricht man von Ionenaustauscherchromatographie. Ionenaus-

tauscher bestehen im Prinzip aus stationär gemachten Gegenionen für die zu trennenden Ionen, enthalten also z. B. kationische Gruppen für die Trennung von Anionen [18].

1.7 Aktivitätsbestimmung

Im Anschluss an die Bestrahlungsexperimente wird die Aktivität der Produktnuklide bestimmt. Dazu werden für die Monitorfolien und die kurzlebigen Positronenemitter γ -Detektoren benutzt. Die gemessenen Impulse sind detektorspezifisch und abhängig von der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors. Diese wiederum ist abhängig von Material und Größe des Detektors, dem Abstand der Proben von der Detektoroberfläche und der γ -Energie. Bei Abständen oberhalb 10 cm und Proben mit geringer Flächenausdehnung nimmt man an, dass die Strahlung sphärisch abgestrahlt wird. Bei geringeren Abständen müssen jedoch Korrekturen bezüglich der Geometrie und Koinzidenzverlusten berücksichtigt werden. Die Ansprechwahrscheinlichkeit eines Detektors wird über den gesamten Messbereich mit Standardpräparaten bekannter Aktivität bestimmt. Die Ansprechwahrscheinlichkeit beschreibt das Verhältnis der gemessenen Aktivität zur absoluten Aktivität. Dabei ist sehr wichtig, dass die Messgeometrie bei der Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit identisch ist mit der Messgeometrie, die bei der Messung der bestrahlten Probe verwendet wird. Aus diesem Grund wird die Vernichtungsstrahlung der β^+ -Strahler zwischen Kupferblechen gemessen. Die Aktivitätsmessungen der Monitorfolien und Positronenemitter erfolgen zerstörungsfrei, d.h. die Proben werden ohne vorherige chemische Behandlung gemessen. Vorteil dieser Methode ist, dass die Proben sehr schnell gemessen werden können. Des Weiteren treten keine Aktivitätsverluste durch eine chemische Abtrennung auf.

Bei der β -Zählung und Röntgenspektrometrie kann im Gegensatz zur γ -Spektrometrie die Eigenabsorption nicht vernachlässigt werden und muss daher vor der Messung experimentell ermittelt werden. Bei den weiche Strahlung emittierenden Nuklide ist es unbedingt erforderlich diese vom bestrahlten Targetmaterial abzutrennen und daraus dünne Proben für die Messungen herzustellen. Bei der Röntgenspektrometrie tritt als zusätzliches Problem auf, dass alle Nuklide eines Elements die gleichen Röntgenlinien emittieren.

1.8 Bestimmung des Teilchenflusses

Mit Hilfe eines Faraday-Cup kann man den Strahlstrom am Zyklotron direkt messen. Kerndaten werden allerdings bei niedrigen Strömen bestimmt, so dass es bei Strommessungen zu großen Fehlern kommt. Da die Zählleinrichtungen nicht ideal gegen andere äußere Ladungen isoliert sind, verfälschen freie Elektronen die Zählraten. Baut man jedoch dünne Metallfolien in den „Stack“ mit ein, so lässt sich der Stromfluss mittels Monitorreaktionen bestimmen. Nach der Bestrahlung wird die Aktivität dieser Folien γ -spektrometrisch bestimmt. Aufgrund ihrer hinreichend bekannten Wirkungsquerschnitte kann nun über die Aktivierungsgleichung der Teilchenfluss berechnet werden. Bei dieser Messmethode muss der Projekttilfluss während der gesamten Bestrahlungszeit (besonders bei langen Bestrahlungszeiten) konstant gehalten werden, da über die Monitorfolien nur ein zeitliches Mittel des Projekttilflusses gemessen werden kann. Die Monitorreaktionen müssen auf die verwendete Projekttilart und den Energiebereich der Projektile im Folienstapel genau abgestimmt sein. Beispiele für solche Monitorreaktionen sind $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{62}\text{Zn}$, $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{63}\text{Zn}$, $^{nat}\text{Ti}(p,x)^{48}\text{V}$ oder $^{27}\text{Al}(p,x)^{22}\text{Na}$ [19].

1.9 Protonentherapie

1.9.1 Geschichte der Hadronentherapie

Die Geschichte der Anwendung von Hadronen (Neutronen, Protonen, Schwerionen, usw.) in der Therapie beginnt 1930 mit der Konstruktion des ersten Zyklotrons durch Ernest Lawrence in Berkeley. Kurz nach der Entdeckung des Neutrons von Chadwick 1932 [20] haben die Brüder Ernest und John Lawrence und deren Mitarbeiter mit Experimenten von schnellen Neutronen an biologischen Systemen in Berkeley begonnen [21]. Am 26. September 1938 wurde der erste Patient mit Neutronen eines 37 inch Zyklotrons in Berkeley bestrahlt [cf. 22]. Robert Wilson schlug 1946 zum ersten Mal Protonen und Schwerionen für die Therapie vor [23]. Die bahnbrechenden Experimente von Tobias et al. [24] ein paar Jahre später bestätigten Wilsons Vorhersage. Zwischen 1954 und 1957 wurden Patienten zum ersten Mal an einem 184 inch Synchrocyclotron in Berkeley von Tobias, John Lawrence und Mitarbeitern bestrahlt [22]. Die Maschine wurde aufgerüstet, so dass die Energie zu hoch zur Protonentherapie geworden war und deshalb von 1957 an Alphateilchen zur Therapie benutzt wurden. 1975 wurden zum ersten Mal

Schwerionen (hauptsächlich Ne) zur Bestrahlung von Patienten in Berkeley eingesetzt [25].

1.9.2 Allgemeine Eigenschaften der Hadronentherapie

Unter externer Strahlentherapie versteht man die Zerstörung von Tumorgewebe durch Elektronen, Röntgenstrahlen, hochenergetische γ -Strahlen oder Hadronen [cf. 26]. Heute gibt es weltweit 20 Zentren für die Bestrahlung mit Protonen. Neue Einrichtungen sind in Vorbereitung oder Diskussion [27]. Einige physikalische Eigenschaften der Teilchen, die in der externen Strahlentherapie eingesetzt werden sind in Tabelle 1 aufgelistet. Die Eindringtiefe eines Ionenstrahls ist genau durch die Primärenergie des Strahls definiert. In der Therapie verwendet man Protonen mit kinetischen Energien zwischen 60 und 250 MeV, korrespondierend zu einer Reichweite in Wasser von 3 bis 38 cm [28].

Tabelle 1 Physikalische Teilcheneigenschaften [29]

Teilchen	Ladung	Masse	Energie für eine Reichweite von ca. 26 cm in Wasser
e	-1 e	1 m_0	70 MeV
π^-	-1 e	273 m_0	100 MeV
n	0	1839 $m_0=1,009$ u	-
^1H (p)	+1 e	1836 $m_0=1,008$ u	200 MeV
^4He (α)	+2 e	4 u	200 MeV/u
^{12}C	+6 e	12 u	380 MeV/u
^{20}Ne	+10 e	20 u	525 MeV/u
^{40}Ar	+18 e	40 u	730 MeV/u

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 geringen Masse schnell auf sehr hohe Geschwindigkeiten beschleunigt werden, ihre Eindringtiefe ist jedoch vergleichsweise gering, da sie einer starken lateralen Streuung unterliegen. Protonen und schwere Ionen 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. 6).

Protonen verlieren ihre Energie hauptsächlich durch elektromagnetische Wechselwirkungen mit Hüllenelektronen. Wegen der geringen Masse des Elektrons verlieren Protonen ihre Energie sukzessive in kleinen Dosen. Aufgrund des sogenannten Bragg-Peak-Effekts kommt es 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.

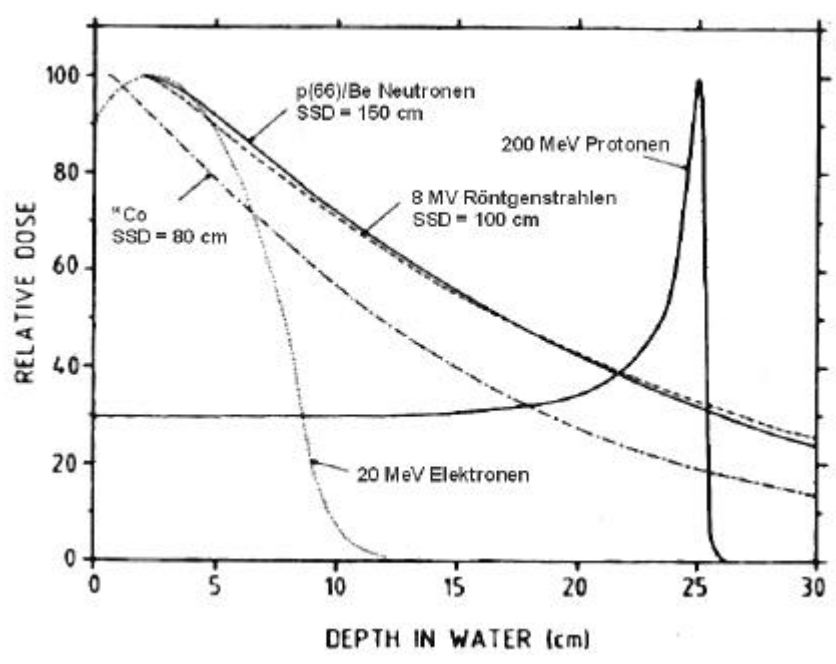


Abb. 6 Tiefe-Dosis-Kurve für verschiedene Strahlungsarten [29].

Die biologische Wirkung der einzelnen Strahlungsarten wird durch den Energieverlust je Längeneinheit (Linear Energy Transfer, LET), äquivalent zum Massenbremsvermögen, charakterisiert. Je höher der Energieverlust je Längeneinheit ist, desto höher ist die biologische Effektivität RBE (Relativ Biological Effectiveness) einer Bestrahlung. Der LET-Wert ist eine Funktion der Protonenenergie. Bei hohen Energien ist er relativ klein und nimmt mit dem Energieverlust des Strahls schnell zu, so dass unterhalb einer gewissen Schwelle die Energie sprunghaft abgegeben wird (Abb. 6). Ionen haben also höhere LET-Werte am Ort der Teilchenreichweite. In Tabelle 2 sind typische LET-Werte für verschiedene Bestrahlungsarten aufgelistet [29].

Tabelle 2 LET-Werte [29]

Strahlung	LET [keV/μm]
Cobalt-60 γ-Strahlen	2
250 kV Röntgenstrahlen	3
Protonen	3
α-Teilchen	5
π ⁻ -Mesonen	10
C-Ionen	15
Ne-Ionen	50
schnelle Neutronen	75
Ar-Ionen	150

1.9.3 Aktivierung des menschlichen Gewebes bei der Protonentherapie

Menschliches Gewebe besteht hauptsächlich aus den Elementen H, C, N und O. Daneben sind F, P und Ca als Bestandteile vorhanden. 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. Tabelle 3 gibt die Zusammensetzung der Elemente im Körper, die mehr als 0,5 % betragen, in Massenprozent wieder.

Tabelle 3 Elementverteilung im Körper [30]

Element	Fettgewebe (0,92 g/cm ³)	Muskelgewebe (1,07 g/cm ³)	Knochen (1,85 g/cm ³)	Reference Man [31]
H	12,0 %	10,3 %	4,7%	10,1 %
C	63,9 %	11,7 %	14,5 %	23,2 %
N	0,8 %	3,2 %	4,2 %	2,6 %
O	23,3 %	74,8 %	44,9 %	61,6 %
F	-	-	-	-
P	-	-	10,6 %	1,1 %
Ca	-	-	21,1 %	1,4 %
Summe	100 %	100 %	100 %	100 %

Die Dichten wurden aus [32] entnommen.

White et al. [30] entwickelten einen All-particle Monte Carlo radiation transport code (PERGRINE) und Hughes et al. [33] einen MCNPX radiation-transport code, mit dessen Hilfe die absorbierte Strahlendosis in der Therapie berechnet werden kann. Diese Berechnungen stellen ein relativ neues Untersuchungsfeld dar. Dazu werden evaluierte Wirkungsquerschnitte für die Reaktion von Protonen mit biologische relevanten Elementen im therapielevanten Energiebereich von 60 bis 200 MeV benötigt [34]. Bis heute existieren jedoch keine ausreichenden Angaben über nukleare Wirkungsquerschnitte zu protoneninduzierten Prozessen an biologisch relevanten Elementen, um genaue Simulationen über Energieabnahme und Energietransport machen zu können [35]. Weiterhin ist die Kenntnis von winkelabhängigen Reaktionswirkungsquerschnitten der bei höheren Energien auftretenden multiplen Teilchenemission von Bedeutung, da sowohl die emittierten Teilchen als auch die Rückstoßwirkung des Restkerns die Verteilung der Energiedosis im Gewebe beeinflusst.

1.9.4 Energiespektren von Protonentherapiebestrahlungen

Um Strahlentherapie mit beschleunigten Protonen machen zu können müssen einige Strahlmodifizierungsvorrichtungen zwischen Beschleuniger und Patienten eingeführt werden. Diese Vorrichtungen sowie die primären Strahlparameter verursachen die Dosisverteilung und das Energiespektrum des Strahls. Monte Carlo und andere analytische Berechnungen können unternommen werden, um diese Effekte vorherzusagen und um sicher zu gehen, dass die Strahleigenschaften optimal für die spezifischen Therapieanforderungen sind. Abb. 7 zeigt die Energiespektren von Protonen, wie sie in der Therapie in den iThemba LABS (Somerset West, Südafrika) verwendet werden. Eine „elastic scattering“-Technik wurde benutzt um die Spektren bei unterschiedlichen Positionen von Kollimatoren, Degradierern und Modulatoren aufzunehmen [cf. 36].

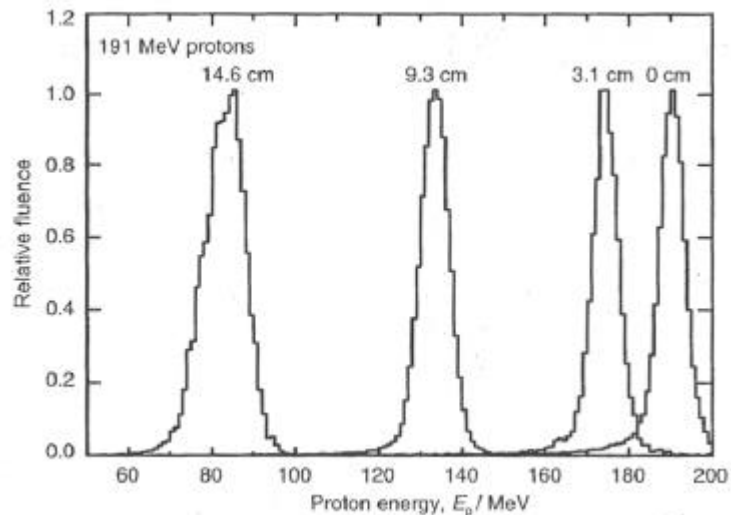


Abb. 7 Protonenfluenzspektren, gemessen an den zentralen Achsen, mit einem Kollimator ($\varnothing = 5$ cm) und 0; 3,1; 9,3 und 14,6 cm dicken Acryldegradierern [36].

Mit ansteigender Dicke des Degradierers nimmt die Peakenergie ab and die Halbwertsdicke des Peaks nimmt zu. Die Anzahl der niederenergetischen Protonen in den Spektren ist jedoch nebensächlich. In Abb. 8 sind Spektren, die mit unterschiedlich rotierenden Modulatoren aufgenommen wurden dargestellt. Hier wird gezeigt, dass der Modulator die Hochenergiekomponente des Strahls aufspreizt.

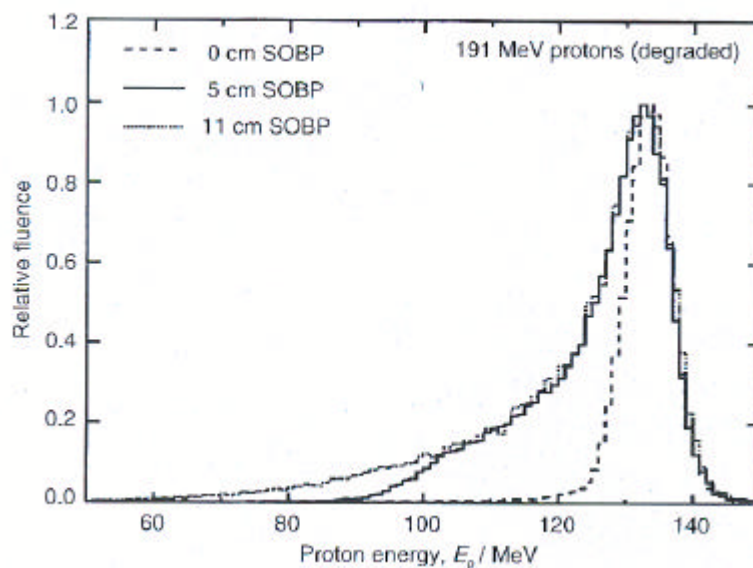


Abb. 8 Protonenfluenzspektren, gemessen an den zentralen Achsen, mit einem Kollimator ($\varnothing = 5$ cm), einem 9,3 cm dicken Acryldegradierer und einem Acrylmodulatorpropeller der 0 cm, 5 cm und 11 cm spread-out Bragg Peaks (SOBP) liefert [36].

Dies unterscheidet den Strahl, der in der Therapie eingesetzt wird, von dem Protonenstrahl mit einer genau definierten Primärenergie, der für die Experimente

dieser Arbeit benutzt wurde. Die in dieser Arbeit benutzten Projektile wurden vom Beschleuniger mittels Magnete in die Strahlrohre gelenkt, und gelangten dann sofort auf die benutzten Targets.

Außer der Gewebeaktivierung ist die Aktivierung von Beschleunigerkomponenten wie z.B. den Strahlkollimatoren interessant, um die dem Bedienungspersonal zugeführte Dosis durch die Aktivierungsprodukte abzuschätzen. Mangels nuklearer Daten ist es schwierig, eine optimale Abschirmung für einen Beschleuniger-Therapieplatz zu konzipieren. Dabei spielen auch die im Strahlrohr erzeugten sekundären Hoch- und Mittelenergieneutronen eine Rolle.

1.10 Dosimetrie

1.10.1 Dosisbegriffe

Als **Energiedosis D** bezeichnet man die von einem bestrahlten Körper absorbierte Energie pro Masseneinheit.

$$D = \frac{dE}{dm} = \frac{dE}{\rho dV} \quad \left[1 \frac{\text{J}}{\text{kg}} = 1 \text{Gy} \right] \quad \text{Gl. 14}$$

Die Energiedosis ist im Gegensatz zur Ionendosis von der Art der absorbierenden Substanz unabhängig.

Die **Ionendosis J** ist die durch Ionisierung in Luft erzeugte Menge an Ionen pro Masseneinheit. Die Ionendosis ist gegeben durch die Ladung dQ der Ionen eines Vorzeichens, welche durch ionisierende Strahlung in Luft in einem Volumenelement dV erzeugt werden, dividiert durch die Masse dieses Volumenelements.

$$J = \frac{dQ}{dm} = \frac{dQ}{\rho dV} \quad [\text{R}] \quad \text{Gl. 15}$$

Die Einheit ist das Röntgen (R). Sie ist definiert als die Strahlendosis an Röntgen- oder γ -Strahlung, welche in 1 cm^3 Luft unter Normalbedingungen Ionen und Elektronen mit einer Ladung von jeweils einer elektrostatischen Einheit erzeugt. Da eine elektrostatische Einheit $2,082 \cdot 10^9$ Elementarladungen entspricht, eine Elementarladung $1,60219 \cdot 10^{-19} \text{ As}$ (C) beträgt und 1 cm^3 Luft unter Normalbedingungen eine Masse von $0,001293 \text{ g}$ hat, folgt $1 \text{ R} = 2,580 \cdot 10^{-4} \text{ C/kg}$.

Die verschiedenen Strahlungsarten unterscheiden sich durch ihre biologische Wirksamkeit. Dies wird durch einen Bewertungsfaktor q berücksichtigt. Das Produkt aus der Energiedosis D und dem Bewertungsfaktor q wird als **Äquivalentdosis D_q** bezeichnet [2].

$$D_q = D \cdot q \quad \left[1 \frac{\text{J}}{\text{kg}} = 1\text{Sv} \right] \quad \text{Gl. 16}$$

In Tabelle 4 sind einige Qualitätsfaktoren für verschieden Strahlenarten aufgeführt.

Tabelle 4 Qualitätsfaktoren für verschiedene Strahlenarten [37]

Strahlenart	Qualitätsfaktor q
Röntgen-, Gammastrahlen	1
Betastrahlen	1
Neutronen je nach Energie	5-20
Protonen	5
Alphastrahlen	20

Durch die Bestimmung einer effektiven Dosis D_{eff} wird das Risiko für das Auftreten möglicher stochastischer Wirkungen bei Exposition einzelner Organe und Gewebe oder des gesamten Körpers bewertet. Die Organdosen der exponierten Organe und Gewebe werden dazu mit Gewebe-Wichtungsfaktoren (Tabelle 5) multipliziert, die ein Maß für den Beitrag des exponierten Organs zum Schadenrisiko des gesamten Körpers darstellen. Die Summe der derart gewichteten Organdosen ist die **effektive Dosis**. Sie wird ebenfalls in Sievert [Sv] angegeben.

Tabelle 5 Wichtungsfaktoren [38]

Organe und Gewebe	Gewebewichtungsfaktor
Keimdrüsen	0,20
Knochenmark (rot)	0,12
Dickdarm	0,12
Lunge	0,12
Magen	0,12
Blase	0,05
Brust	0,05
Leber	0,05
Speiseröhre	0,05
Schilddrüse	0,05
Haut	0,01
Knochenoberfläche	0,01
Restkörper	0,05

Bezieht man die Dosis auf eine bestimmte Zeiteinheit, so spricht man von Dosisleistung. Die Dosisleistung wird in der Regel auf eine Stunde bezogen und z.B. in Gray oder Sievert pro Stunde angegeben [2].

1.10.2 Äußere Strahleneinwirkung

Empfindlich gegenüber der Einwirkung ionisierender Strahlung sind die blutbildenden Organe, die Keimdrüsen und die Augen. Weniger empfindlich sind die Arme, Hände, Beine, Füße, der Kopf (mit Ausnahme der Augen) und der Nacken. Die Ionendosisleistung, die ein Körper von einer punktförmigen Strahlenquelle der Aktivität A im Abstand r erhält berechnet sich für γ -Strahlung nach folgender Gleichung:

$$\frac{dJ}{dt} = k_{\gamma} \frac{A}{r^2} \quad \text{Gl. 17}$$

A : Aktivität [GBq]

r : Abstand [m]

k_{γ} : Dosisleistungskonstant für γ -Strahlung $\left[\frac{\mu\text{Sv} \cdot \text{m}^2}{\text{h} \cdot \text{GBq}} \right]$

Für die Dosisleistung eines β -Strahlers ergibt sich:

$$\frac{dD}{dt} = k_{\beta}(r) \frac{A}{r^2} \quad \text{Gl. 18}$$

allerdings muss man berücksichtigen, dass k_{β} keine Konstante ist, sondern stark vom Abstand r abhängt. Die Größe $k_{\beta}(r)$ wird auch als Punktquellen-Dosisfunktion bezeichnet [2].

1.10.3 Innere Strahleneinwirkung

Inkorporierte, d.h. vom Körper aufgenommene, Radionuklide können sich an bestimmten Stellen anreichern und dort bis zu ihrem vollständigen Zerfall wirksam sein. Für die Beurteilung der Radiotoxizität ist es deshalb wichtig, ob ein Radionuklid in den Knochen oder in einem Organ angereichert wird und wie groß seine Halbwertszeit ist. Die Aktivitätsabnahme im Körper erfolgt sowohl durch den radioaktiven Zerfall, als auch durch die Ausscheidung des Radionuklids aus dem Körper. Letztere wird durch die biologische Halbwertszeit charakterisiert [2].

Weiß man die Verteilung und Biokinetik einer applizierten Aktivität im Körper, dann lässt sich die absorbierte Energiedosis abschätzen, sofern man die Energie der Strahlung kennt und weiß, wie viel dieser Strahlung in den umliegenden Gewebe absorbiert wird. Meistens gelangen nur ein paar Prozent der injizierten Aktivität in die wichtigen Organe. Die restliche Aktivität ist mehr oder weniger gleichmäßig im gesamten Körper verteilt [39]. Zur Abschätzung der Energiedosen, die den einzelnen Organen zugeführt werden kann das MIRD-(Medical Internal Radiation Dose) Konzept dienen. Nach diesem Konzept wird zwischen einem Quell- und Zielorgan unterschieden. Im Quellorgan befindet sich die Aktivität, die eine Dosis an umliegende Organe und Gewebe abgibt. In der MIRD-Datenbank [40], die auf der ENSDF-Bibliothek basiert, sind Tabellen mit Intensitäten und Energien aller Strahlungsarten eines Radionuklids enthalten. Die Energiedosis, die einem Organ zugeführt wird, ist die Summe aller Dosen, die von der Aktivität selbst im Organ verursacht wird und vom umliegenden Gewebe an das Organ abgegeben wird.

2 Problemstellung

Bei der Protonentherapie bedarf es zur Abschätzung der Gewebeaktivierung einer genauen Kenntnis der stattfindenden Kernprozesse und der entsprechenden Kernreaktionsdaten. Die Zerstörung von Tumorgewebe mit hochenergetischen Protonen beruht auf der Ionisation von Gewebemolekülen. Durch protoneninduzierte Kernreaktionen an C, N und O im Gewebe kommt es weiterhin zur Bildung der kurzlebigen Positronenstrahler ^{11}C ($T_{1/2} = 20,38 \text{ min}$) und ^{13}N ($T_{1/2} = 9,96 \text{ min}$). Die Wirkungsquerschnitte zur Bildung dieser Positronenstrahler an biologisch relevanten Elementen sind im Niederenergiebereich gut bekannt. Der Status der nuklearen Daten im therapielevanten Energiebereich von 60 bis 250 MeV ist jedoch relativ unbefriedigend.

In dieser Arbeit sollen die Kernreaktionsdaten im therapielevanten Energiebereich experimentell bestimmt und mit ALICE-IPPE Kernmodellrechnungen verglichen werden. Da es sich hier um leichte Elemente handelt, ist die theoretische Beschreibung wegen der großen Struktureffekte schwierig.

Mit Hilfe der ermittelten Kerndaten sollen die im Gewebe gebildeten Aktivitäten ermittelt und die dadurch zusätzlich entstandene Energiedosis in den einzelnen Geweben und Organen abgeschätzt werden.

Beim Auftreffen des Therapiestrahls auf Strahlmodulierungskomponenten entstehen weiterhin langlebige Aktivierungsprodukte. Mangels nuklearer Daten ist es schwierig, eine optimale Abschirmung für einen Beschleuniger-Therapieplatz zu konzipieren. Die Aktivierung von Beschleunigerkomponenten, wie z.B. den Strahlkollimatoren, ist besonders im Hinblick auf die dem Bedienungspersonal zugeführte Dosis interessant. Die Strahlkollimatoren in unmittelbarer Nähe des Patienten bestehen häufig aus Blei, Titan oder Messing. In dieser Arbeit sollen die protoneninduzierten Reaktionen an Titan und Blei mit Schwerpunkt auf die weiche Strahlung emittierenden Nuklide ^{45}Ca , ^{49}V und ^{204}Tl untersucht werden, da die Reaktionswirkungsquerschnitte dieser Nuklide im therapielevanten Energiebereich noch nicht erforscht wurden. Für die Ermittlung der β - und Röntgenaktivität müssen dünne Messpräparate hergestellt werden. Deshalb müssen für diese Radionuklide radiochemische Abtrennungen von den stark aktivierten Targets ausgearbeitet

werden. Die experimentell ermittelten Anregungsfunktionen der ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x){}^{45}\text{Ca}$, ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x){}^{49}\text{V}$ und ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,x){}^{204}\text{Tl}$ Kernreaktionen sollen ebenfalls mit ALICE-IPPE Kernmodellrechnungen verglichen werden.

Die Anreicherung der langlebigen Aktivierungsprodukte von Titan, (${}^{44\text{m}}, {}^{46-48}\text{Sc}$, ${}^{48}\text{V}$, ${}^{49}\text{V}$ und ${}^{45}\text{Ca}$) und Blei (${}^{205-205}\text{Bi}$, ${}^{203}\text{Hg}$, ${}^{203}\text{Pb}$, ${}^{201,202}\text{Tl}$ und ${}^{204}\text{Tl}$) soll unter Therapiebedingungen berechnet werden. Die dazu erforderlichen gut bekannten Anregungsfunktionen werden der Literatur entnommen.

Die Dosisberechnung soll für einen Hirntumor durchgeführt werden. Dazu wird ein Modell des menschlichen Schädels benötigt. Zur Abschätzung der Energiedosis die, durch die kurzlebigen Positronenemitter, den umliegenden Organen zugeführt wird, soll das MIRD-(Medical Internal Radiation Dose) Konzept dienen.

Des weiteren soll die Ionendosis, die das Bedienungspersonal durch die Kollimatoraktivierung erfährt abgeschätzt werden.

3 Experimenteller Teil

3.1 Bestrahlungen

3.1.1 Targetmaterialien

Um Reaktionen an einem gewünschten Kern studieren zu können, muss dieser entweder als reines Element oder in einer Verbindung bestrahlbar sein. Dies bedeutet, dass das verwendete Target sich im Teilchenstrahl nicht verändern darf. Veränderungen am Target können entweder durch strahlenchemische oder durch thermische Prozesse entstehen. Bei der Bestrahlung von chemischen Verbindungen muss der Einfluss des Bindungspartners auf die zu untersuchende Kernreaktion abgeschätzt werden. Neben der für Positronenstrahler typischen 511-keV-Vernichtungsstrahlung weisen Kohlenstoff-11, Stickstoff-13 und Fluor-18 keine weiteren γ -Linien auf. Zur Aktivitätsbestimmung wurden daher Zerfallskurven aufgenommen und analysiert. Um die Analyse der Zerfallskurven zu vereinfachen und den Fehler gering zu halten, sollten die Targets möglichst nur solche zusätzlichen chemischen Elemente enthalten, bei denen durch protoneninduzierte Kernreaktionen nur sehr kurzlebige bzw. sehr langlebige Positronenstrahler aktiviert werden. Aus diesem Grund wurden Stickstoff und Sauerstoff als hochschmelzende Keramik (Si_3N_4) und Quarzglas (SiO_2) eingesetzt. Die Elemente Kohlenstoff, Titan und Blei konnten direkt in elementarer Form bestrahlt werden. Tabelle 6 enthält die in den Experimenten verwendeten Targetmaterialien.

Tabelle 6 Targetmaterialien

Material	Element	Zusammensetzung [%]	Form	Hersteller
Graphit EK 98	C	99,999	Scheibe	Goodfellow
Si_3N_4	Si	60,1	Pellet	Goodfellow
	N	39,9		
SiO_2	Si	46,7	Scheibe	Heraeus
	O	53,3		
Titan	Ti	99,9	Folie	Goodfellow
Blei	Pb	99,9	Folie	Goodfellow

3.1.2 Bestrahlungsexperimente

Die Bestimmung der Anregungsfunktionen erfolgte nach der „stacked-foil“-Technik. Hierbei wurden Folienstapel, die mehrere Target-, Absorber- und Monitorfolien bzw. Scheiben enthielten, bestrahlt. Durch die Energieabsorption der Projektileteilchen im

Folienstapel konnten Wirkungsquerschnitte bei unterschiedlichen Energien mit einem einzigen Bestrahlungsexperiment bestimmt werden.

Die für diese Arbeit erforderlichen Bestrahlungsexperimente wurden an verschiedenen Zyklotronen durchgeführt. Bestrahlungen bis 20 MeV erfolgten am Kompaktzyklotron CV28 der Forschungszentrum Jülich GmbH. Der Folienstapel wurde in einem Targethalter aus Aluminium befestigt. Der Targethalter ist von innen hohl und wurde während der Bestrahlung mit Wasser gekühlt (2π -Kühlung). In Abb. 9 ist die Bestrahlungseinrichtung am Kompaktzyklotron CV28 dargestellt.

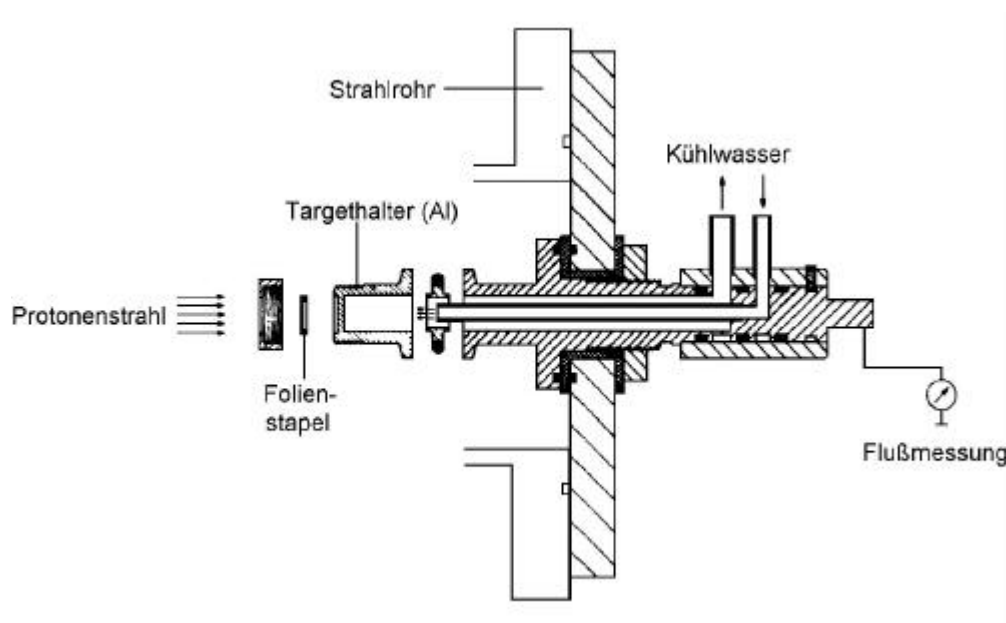


Abb. 9 Einrichtung zur Bestrahlung von Folienstapeln am Kompaktzyklotron CV 28 [41].

Bestrahlungen mit Protonenenergien zwischen 30 und 45 MeV wurden am Injektorzyklotron (JULIC) des Cooler Synchrotron (COSY) der Forschungszentrum Jülich GmbH durchgeführt. Die Folienstapel wurden in einen Targethalter (Abb. 10) eingespannt, der in das Innere des Zyklotrons eingeschleust werden konnte, ohne dabei das Zyklotronvakuum zu beeinträchtigen. Hinter den Folien befand sich ein Beamstop aus Aluminium, der den Protonenstrahl komplett absorbierte. Für die Bestrahlung wurde ein Teil des internen Strahls mit einem Septum aus einer dünnen Wolframfolie abgetrennt und dann durch ein elektrostatisches Feld, das sich

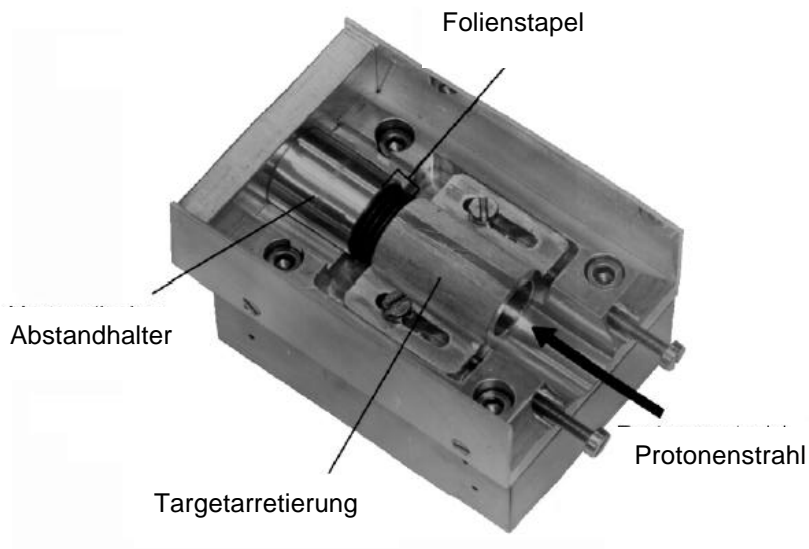


Abb. 10 Targethalter für Bestrahlungsexperimente am Injector von COSY [42].

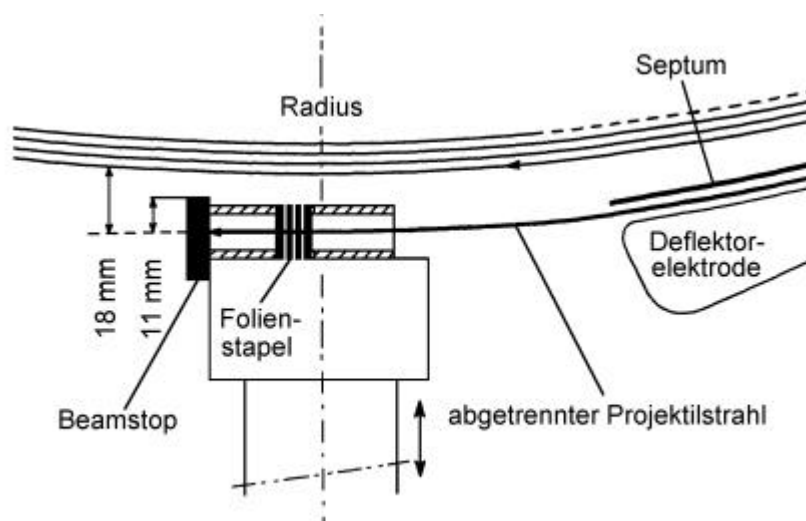


Abb. 11 Projektillbahn im Inneren des Zyklotrons und des abgetrennten Strahles am Injector des COSY [42].

zwischen dem Septum und einer Hochspannungselektrode befand abgelenkt [42] (s. Abb. 11).

Protonenbestrahlungen im Energiebereich von 40-72 MeV wurden am Phillips Injector I Cyclotron des Paul Scherrer Instituts (PSI) in Villigen (Schweiz) durchgeführt. Die Geometrie der Stackhalter ist durch den am PSI gegebenen Aufbau fest-

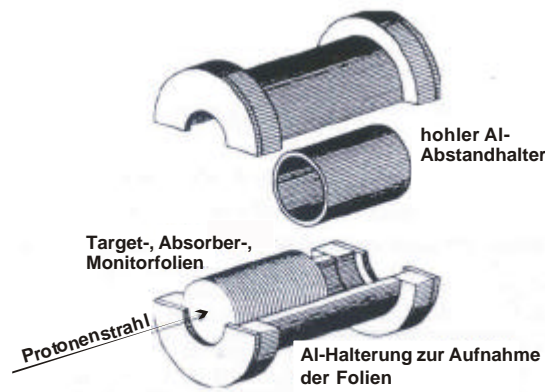


Abb. 12 Stackhalter für Bestrahlungselemente am PSI [43].

gelegt. Der Aluminiumhalter besteht aus zwei verschraubten Halbschalen, deren Innendurchmesser 15 mm beträgt. Abb. 12 zeigt einen Stackhalter, wie er am PSI verwendet wurde. Der Halter wurde in einem Abstand von weniger als 1 Meter hinter einem dünnen Austrittsfenster aus Aluminium montiert. Zur Online Messung und Justierung des Protonenstrahls befand sich ein Farady-Cup unmittelbar hinter der Stackhalterung.

Des weiteren wurden Bestrahlungen mit 66, 100, 150 und 200 MeV Einschussenergien am Separated-Sector-Cyclotron (SSC) der iThemba LABS in Somerset West (Südafrika) unternommen. Abb. 13 zeigt ein Schema der dortigen Bestrahlungseinrichtung. Die Strahleinstellung erfolgte über einen Fokussier-Schirm mit einer BeO-Scheibe. Dieser Fokussier-Schirm hat die gleichen Maße wie der Targethalter und wurde vor den Experimenten im Strahlrohr an der gleichen Position wie später der Targethalter angebracht. Bei niedrigen Strahlströmen leuchtete die BeO-Scheibe auf, was über eine Kamera beobachtet wurde. Auf diese Weise wurde der Strahl optisch justiert.

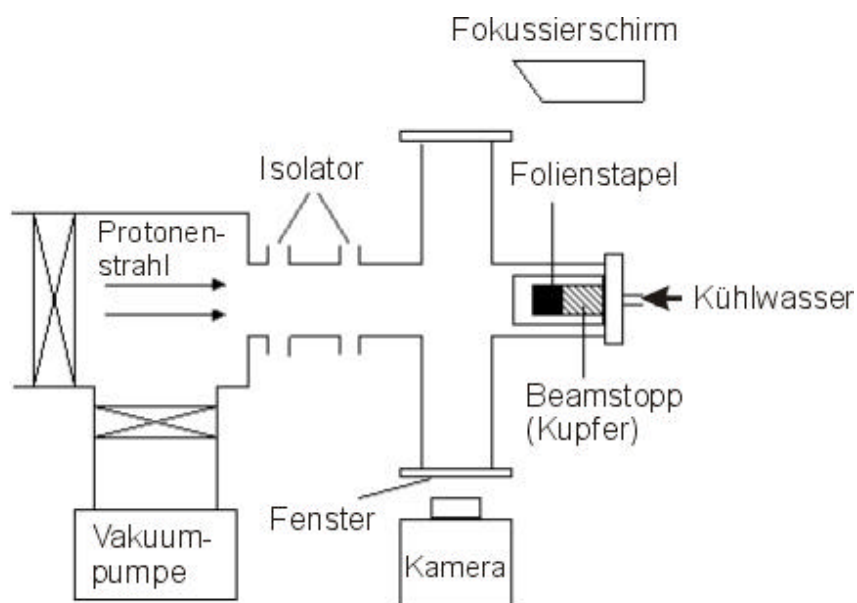


Abb. 13 Schematische Darstellung der Bestrahlungseinrichtung am Separated-Sector-Cyclotron der iThemba LABS in Somerset West (Südafrika) [44].

3.1.3 Bestrahlungsparameter

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Bestrahlungsexperimente durchgeführt. Die Bestrahlungsparameter sind in Tabelle 7 aufgeführt.

3.1.4 Energiedegradation

Der Bethe-Formalismus zum Energieverlust geladener Teilchen in Materie ist als Iterations-Programm in ein Microsoft Excel™-Dokument implementiert. Mit Hilfe dieses Programms ließ sich der Energieverlust des Protonenstrahls für ein Targetelement der Ordnungszahl Z , Atommasse M und Flächendichte x berechnen. Verbindungen ABC wurden wie aus Reinelement-Schichten A, B, C aufgebaute Materialien behandelt. Als wirksame 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. Da die Unsicherheit der Targetmasse (Wägefehler) verglichen mit der Unsicherheit der primären Projektilenergie sehr klein war, wurde sie ebenfalls bei diesem Verfahren vernachlässigt.

Tabelle 7 Bestrahlungsparameter

Experiment	Target	Einschuss- energie [MeV]	Protonen- fluss [nA]	Bestrahlungs- ende	Bestrahlungs- dauer [min]
CV28-1	Graphit	20	110	13.07.01 10 :58	10
CV28-2	Si ₃ N ₄	20	535	27.07.01 09 :07	10
COSY-1	Graphit	45	87	03.05.01 08:07	15
COSY-2	Si ₃ N ₄	45	38	14.05.01 07:58	10
COSY-3	Si ₃ N ₄	45	27	07.08.01 07:56	10
COSY-4	Si ₃ N ₄	45	30	02.05.02 08:23	10
COSY-5	Ti	45	107	26.09.02 09:50	120
PSI_C	Graphit	71,2	52	20.02.02 11:49	10
PSI_N	Si ₃ N ₄	71,2	58	20.02.02 09:20	10
PSI_O	SiO ₂	71,2	53	20.02.02 14:08	10
PSI_Ti	Ti	71,2	36	18.02.02 21:40	685
PSI_Pb	Pb	71,2	60	20.02.02 08:59	645
iThemba_N_66	Si ₃ N ₄	66,6	75	05.12.01 21:12	10
iThemba_C_66	Graphit	66,6	67	06.12.01 00:51	10
iThemba_Ti_Pb_66	Ti, Pb	66,6	40	06.12.01 21:08	104
iThemba_O_66	SiO ₂	67,0	45	18.12.01 12:26	10
iThemba_N_200	Si ₃ N ₄	201,4	29	13.12.01 18:23	10
iThemba_C_200	Graphit	201,4	30	13.12.01 21:47	10
iThemba_O_200	SiO ₂	201,4	31	14.12.01 01:00	10
iThemba_Ti_200	Ti	201,99	75	13.12.02 08:04	484
iThemba_N_150	Si ₃ N ₄	149,6	50	22.09.02 04:36	10
iThemba_N_100	Si ₃ N ₄	99,72	84	20.12.02 19:51	10
iThemba_O_100	SiO ₂	99,72	56	20.12.02 22:54	10
iThemba_Ti_Pb_100	Ti, Pb	99,72	99	21.12.02 12:00	759

3.2 Aktivitätsbestimmung

3.2.1 g-Spektrometrie

Die Gammaskpektrometrie wurde mit HPGe-Detektoren der Firma EG&G ORTEC, die über ORTEC 4 K Vielkanal-Impulshöhenanalysatoren (MCA) an einen PC angeschlossen waren, gemessen. Am PSI war die Einsteckkarte allerdings an eine VAX gekoppelt. Die Auswertung der Spektren erfolgte im Forschungszentrum Jülich mit der Software der Firma EG&G ORTEC (Gamma Vision). Die Spektren aus Südafrika wurden mit dem Programm Emcaplus der Firma SILENA ausgewertet und die in der Schweiz aufgenommenen Spektren wurden mit Gamma-W für Windows von der Dr. Westmeier GmbH ausgelesen. Der Probenabstand vom Detektorkopf

wurde so gewählt, dass die Totzeit stets kleiner als 7 % war. Auf diese Weise wurden Zählverluste durch zufällige Koinzidenzen vermieden.

Vor den Messungen wurde mit Hilfe von Standardpräparaten der Firma Amersham-Buchler und der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) Braunschweig die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors bestimmt. Da die Proben nie näher als 10 cm vom Detektorkopf entfernt waren und die Zählrate durch Erhöhung des Probenabstandes niedrig gehalten wurde, konnten Pile-Up-Effekte und Koinzidenzeffekte bei der Spektrometrie vernachlässigt werden. Die Detektoransprechwahrscheinlichkeit ε wurde für mehrere Abstände zum Detektorkopf aus der Peakfläche P_A , der effektiven Messzeit T_k und der absoluten Aktivität A_{abs} des Standards mit der γ -Emissionshäufigkeit I_γ bestimmt:

$$\varepsilon = \frac{P_A}{A_{\text{abs}} \cdot I_\gamma \cdot T_k} \quad \text{Gl. 19}$$

In Abb. 12 ist ein Ausschnitt einer typische Kurve für die Ansprechwahrscheinlichkeit eines HPGe-Detektors dargestellt. Die Detektoren sind bis 2 MeV kalibriert.

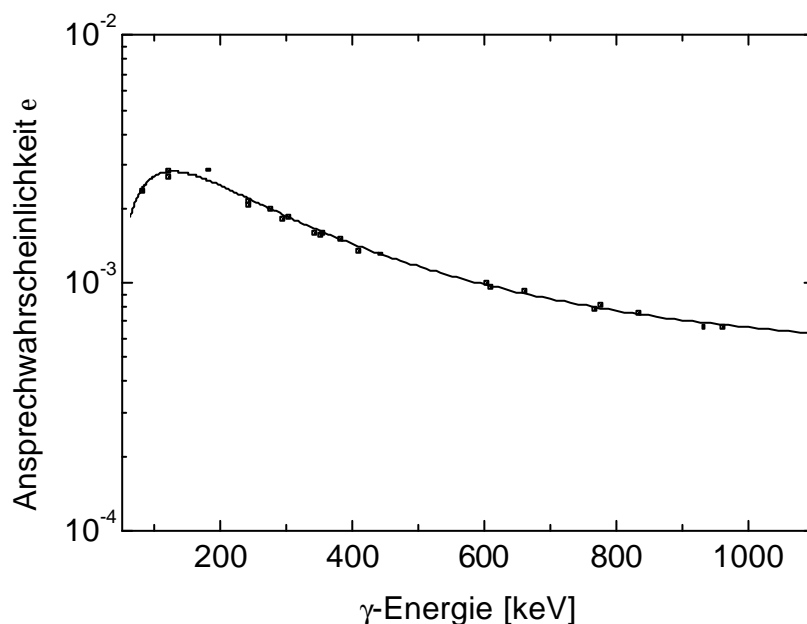


Abb. 14 Ansprechwahrscheinlichkeit eines HPGe-Detektors für einen Probenabstand von 10 cm.

3.2.2 Röntgenspektrometrie

Radionuklide die, wie Vanadium-49, durch Elektroneneinfang (electron capture, EC) zerfallen, lassen sich über die Emission charakteristischer Röntgenstrahlung bestimmen. Der Elektroneneinfang führt zu einer Vakanz in der betreffenden Schale der Hülle. Diese wird entweder strahlungslos, d.h. durch Augerelektronen aufgefüllt, oder unter Aussendung der charakteristischen Röntgenstrahlung des Tochterkerns als K-X, L-X-Strahlung usw. Da die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons auch im Kernbereich endliche Werte hat, ist sie für die K-Schale am größten. Deshalb ist der K-Einfang am häufigsten. Im Gegensatz zum β^+ -Zerfall, der nur möglich ist, wenn $E_Q(\beta^+) \geq 2E_0(e) = 1,022 \text{ MeV}$ ist, kann der Elektroneneinfang immer dann ablaufen, wenn die Zerfallsenergie größer ist als die Bindungsenergie des einzufangenden Elektrons.

Die Nachweisgrenze der emittierten Röntgenstrahlen hängt von der Fluoreszenzausbeute ω und der Detektoreffektivität ab. Die Fluoreszenzausbeute ist das Verhältnis der Zahl der emittierten charakteristischen Röntgen-Quanten zur Zahl der primär erzeugten Vakanzen. Sie ist eine Funktion der Ordnungszahl Z und der Schale des Atoms [cf. 2].

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 ebenfalls mit der Auswertesoftware Gammavision (EG&G ORTEC) bedient wurde. Die der γ -Spektrometrie entsprechende Bestimmung der Detektoransprechwahrscheinlichkeit geschah mit Hilfe einer variablen Röntgenquelle der Firma Amersham-Buchler und eines ^{55}Fe -Standards für einen festen Abstand. Die variable Röntgenquelle besteht aus einer ^{241}Am -Quelle und Folien aus Ag, Ba, Cu, Mo und Rb. Beim Eintritt der α -Strahlung aus der Am-Quelle in die verschiedenen Folien werden Vakanzen in den Atomhüllen gebildet. Diese werden durch äußere Hüllenelektronen aufgefüllt, wodurch charakteristische Röntgenstrahlen emittiert werden. Im Gegensatz zum ^{55}Fe , das durch Elektroneneinfang zerfällt und wie oben beschrieben durch die emittierten Röntgenstrahlen des Tochteratoms (Mn) bestimmt werden kann, nutzt man bei der variablen Röntgenquelle zur Anregung der charakteristischen Röntgenstrahlung die Primärstrahlen des Am aus. Man spricht von Röntgen-Emissionsanalyse.

Da die Ansprechwahrscheinlichkeit eines Si(Li)-Detektors geringer ist als die eines Reinstgermanium-Detektors, betrug der Probenabstand zum Detektorkopf nur wenige mm. Trotz der schlechteren Ansprechwahrscheinlichkeit werden Si(Li)-Detektoren zur Röntgenspektrometrie benutzt, da sie eine höhere Energieauflösung im Energiebereich bis 100 keV besitzen. In Abb. 13 ist die Ansprechwahrscheinlichkeit eines Si(Li)-Detektors in Abhängigkeit von der Röntgenenergie dargestellt.

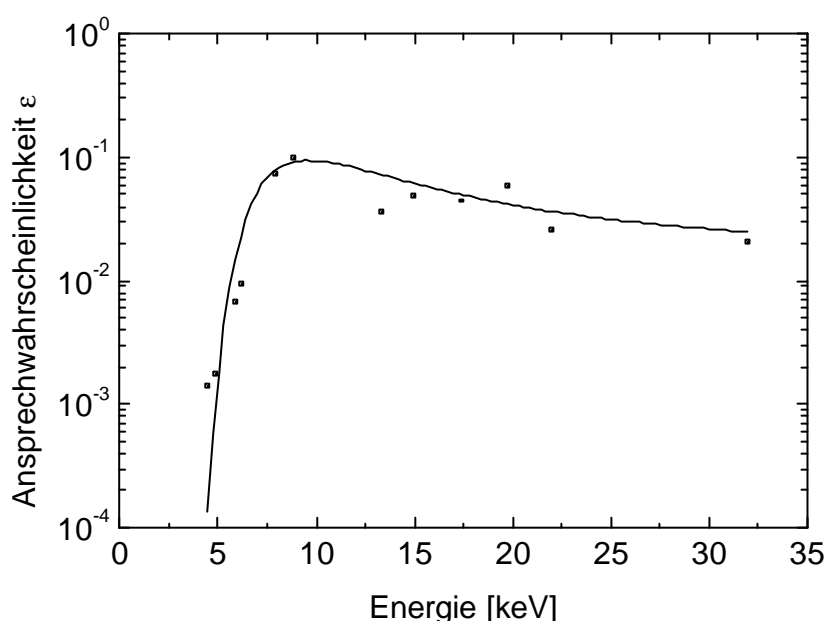


Abb. 15 Ansprechwahrscheinlichkeit eines Si(Li)-Halbleiterdetektors in Abhängigkeit von der Röntgenenergie.

Anders als bei der γ -Spektrometrie lässt sich die Selbstabsorption in einem Präparat mit geringer räumlicher Ausdehnung nicht vernachlässigen. Häufig bestimmt man die Absorption mit Hilfe von Eichstrahlern, die in einer der Probe identischen Geometrie gemessen werden, oder man stellt extrem dünne Präparate her, die eine Vernachlässigung der Strahlenabsorption erlauben.

In dieser Arbeit wurden zur Bestimmung der Detektoransprechwahrscheinlich die $L_{\alpha 1}$ - ($E = 4,466$ keV, $I = 4,1$ %) und $L_{\alpha 2}$ -Linien ($E = 4,451$ keV, $I = 0,45$ %) [45] von Barium herangezogen, die aufgrund der Kanalbreite des Systems nicht mehr getrennt werden konnten, und der Röntgenenergie von ^{49}V ($\text{TiK}_{\alpha 1} = 4,511$ keV; $I = 11,47$ %, $\text{TiK}_{\alpha 2} = 4,505$ keV; $I = 5,78$ %) [46] entsprechen.

3.2.2.1 ^{49}V -Standard zur Bestimmung der Selbstabsorption

Zur Bestimmung der Selbstabsorption wurden Titanfolien natürlicher Zusammensetzung, wie sie in dieser Arbeit zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte für die Bildung von ^{45}Ca und ^{49}V verwendet wurden, am Kompaktzyklotron CV28 des Forschungszentrums Jülich mit 20 MeV Protonen 30 min bestrahlt. Das über die $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,n)$ -Reaktion gebildete ^{48}V ($\text{TiK}_{\alpha 1} = 4,511$ keV; $I = 5,77$ %, $\text{TiK}_{\alpha 2} = 4,505$ keV; $I = 2,91$ %) [46] zerfällt unter Aussendung der gleichen Röntgenlinien wie ^{49}V , emittiert aber ebenfalls zwei γ -Quanten mit 984 keV ($I_{\gamma} = 99,99$ %) und 1312 keV ($I_{\gamma} = 97,49$ %) [45], welche zur Aktivitätsbestimmung des Standards mittels γ -Spektrometrie gebraucht wurden. Während einer 30 minütigen Bestrahlung bildet sich so wenig V-49 ($T_{1/2} = 330$ d) dass die Aktivität vernachlässigt wurde. Die Abtrennung des Vanadiums und die Probenpräparation geschah in der gleichen Weise wie in Abschnitt 3.5.1 Trennung Ti/V/Ca beschrieben. Allerdings wurden verschiedene Menge V-Träger verwendet, um die Selbstabsorption in Abhängigkeit von der V-Menge bestimmen zu können. Durch Vergleich der γ -spektrometrisch bestimmten ^{48}V -Aktivität mit der röntgenspektrometrisch bestimmten ^{48}V -Aktivität wurde die Selbstabsorption der Probe bestimmt. In Abb. 16 ist die Selbstabsorption im V_2O_5 -Messpräparat in Abhängigkeit von der Vanadiummenge dargestellt.

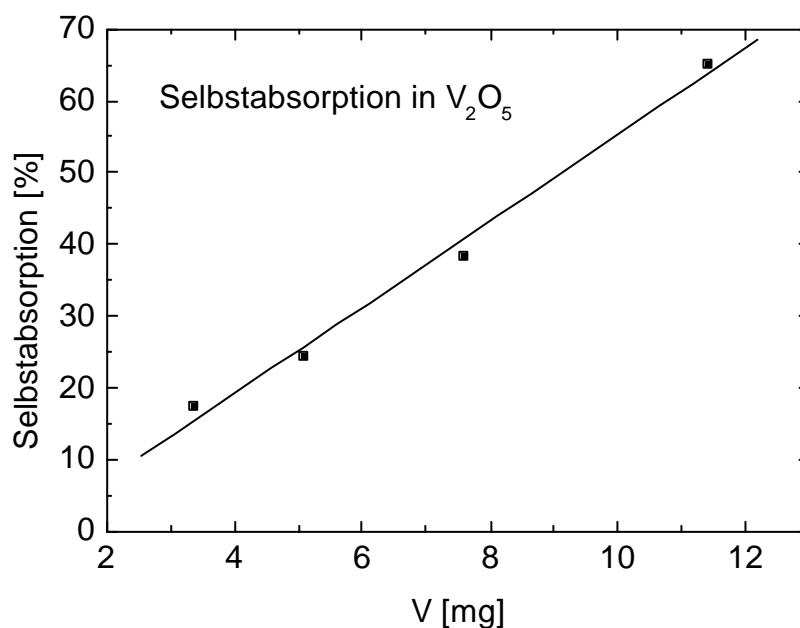


Abb. 16 Selbstabsorption im V_2O_5 -Messpräparat in Abhängigkeit von der Menge Vanadium.

3.2.3 β -Zählung

3.2.3.1 Durchflussproportionalzähler

Die reine β -Strahlung emittierenden Proben wurden mittels eines Antikoinzidenz-Durchflussproportionalzählers der Firma Berthold untersucht. Als Zählgas wurde P10 Gas (Argon/Methan) verwendet. Für die Ansprechwahrscheinlichkeit des Durchflussproportionalzählers ergibt sich eine der hochauflösenden γ -Spektrometrie analoge Beziehung:

$$I = \varepsilon \cdot H \cdot A + u \quad \text{Gl. 20}$$

I: vom Detektor gemessene Impulsrate

ε : Detektoransprechwahrscheinlichkeit

H: Intensität der emittierten β -Strahlung / Zerfall

A: Aktivität

u: Untergrund

Die Detektoransprechwahrscheinlichkeit berücksichtigt die Zählraumbeute des Detektors, die Absorption der Strahlung auf dem Weg zum Zählgas und Rückstreuungseffekte, die durch die Präparatunterlage entstehen. Durch die Geometrie wird in dem Durchflussdetektor die Strahlung im Raumwinkel 2π erfasst, die ideal erreichbare Detektoreffektivität beträgt somit 50 %.

Bei den mittels des Antikoinzidenz-Durchflussproportionalzählers ermittelten Impulsraten muss der Anteil des Untergrundes u manuell subtrahiert werden. Aufgrund der besonderen Antikoinzidenz-Anordnung liegt die Untergrundimpulsrate im Bereich von 2-3 cpm. Impulse werden nur an die Zählleinheit weitergeleitet, wenn auf Schirm- und Messdetektor nicht gleichzeitig ein Ereignis registriert wird. Im Hinblick auf die niedrigen Zählraten war die Totzeit nach der Antikoinzidenzstufe mit 100 μ s festgelegt worden und brauchte damit praktisch nicht berücksichtigt zu werden.

Die Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit erfolgte mit Standardpräparaten der Firma New England Nuclear (NEN) bekannter absoluter Aktivität. Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Proportionalzählers in Abhängigkeit von der β -Maximalenergie der Standardpräparate zeigt Abb. 17.

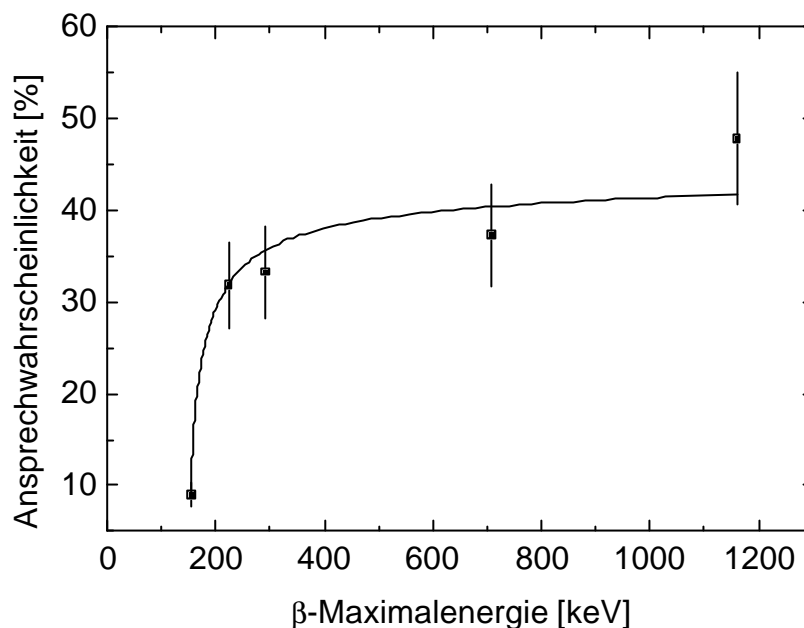


Abb. 17 Ansprechwahrscheinlichkeit des Antikoinzidenz-Durchflussproportionalzählers in Abhängigkeit von der β -Maximalenergie der Standardpräparate.

3.2.3.1.1 ^{45}Ca -Standard zur Bestimmung der Selbstabsorption

Die Aktivität einer ^{45}Ca -Lösung der Firma Amersham-Buchler wurde mittels β -Zählung und Flüssigszintillationszählung bestimmt. Mit einem Aliquot dieser Lösung mit bekannter Aktivität wurde die Trennung wie unter 3.5.1 beschrieben durchgeführt. Die chemische Ausbeute wurde gravimetrisch bestimmt und die Aktivität des ^{45}Ca -oxalats im Proportionalzähler bestimmt. Durch Vergleich der Aktivitäten vor und nach der Trennung, korrigiert um die chemische Ausbeute, wurde die Selbstabsorption im Messpräparat für den Proportionalzähler bestimmt. Sie betrug 38 %.

3.2.3.1.2 ^{204}Tl -Standard zur Bestimmung der Selbstabsorption

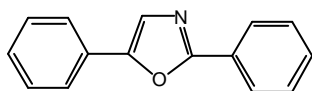
500 mg natürliches Thalliumnitrat (29,5 % ^{203}Tl , 70,5 % ^{205}Tl) wurden 5 min im Reaktor des Forschungszentrums bestrahlt. Über die $^{203}\text{Tl}(n,\gamma)$ Reaktion entstand ^{204}Tl ($T_{1/2} = 3,78$ a). Das TlNO_3 wurde in 5 ml Wasser gelöst und ein Aliquot entnommen. Nach Zerfall des ebenfalls entstandenen ^{202}Tl ($T_{1/2} = 12,23$ d) wurde die Aktivität im Proportionalzähler bestimmt. Mit einem weiteren 1 ml Aliquot wurde zur Bestimmung der Selbstabsorption die Trennung wie unter 3.5.2 beschrieben durchgeführt und die chemische Ausbeute bestimmt. Das Standardpräparat wurde im Proportionalzähler gemessen, die ^{204}Tl -Aktivität bestimmt und um die chemische

Ausbeute korrigiert. Durch Vergleich der Aktivitäten vor und nach der Trennung wurde eine Selbstabsorption in den Messpräparaten von 16,7 % berechnet.

3.2.3.2 Flüssigszintillationszählung

Wegen ihrer sehr niedrigen β^- -Endpunktenergien wurden die ^{45}Ca -Proben zusätzlich in einem Flüssigszintillationsspektrometer der Firma Canberra Packard, Model Tri-Carb 2300 TR, gezählt. Das Szintillationsspektrometer enthält zwei Photoverstärker-Röhren, die über eine Koinzidenz-Schaltung gekoppelt sind, und eine ^{133}Ba -Quelle zur externen Standardisierung. Die Methode des externen Standards beruht auf der Verwendung einer äußeren γ -Quelle die zur Bestimmung der Löschung an die Messprobe herangefahren wird. Die γ -Quanten des Ba-133 erzeugen durch Wechselwirkung mit den Lösungsmittelmolekülen Comptonelektronen in der Szintillationslösung. Die Comptonelektronen unterliegen den gleichen Löschbedingungen wie die β^- -Teilchen. Durch Löschung verschiebt sich der Endpunkt des Spektrums zu niedrigeren Energien. Dies wird durch die dimensionslose Größe tSIE (transformed Spectral Index of External Standard) ausgedrückt. Die Verknüpfung des Quenchparameters einer Probe mit der zugehörigen Zählausbeute und damit die Umrechnung der gemessenen Impulsrate in Aktivität der Messprobe wird durch die Auswertung mit einer Quenchkurve erreicht. Als Quenchparameter wurde der tSIE-Wert am System vorgegeben. Als Szintillationscocktail wurde Ultima GoldTMXR der Firma Packard benutzt, der als Primärszintillator 2,5-Diphenyloxazol (PPO) und als Sekundärszintillator 1,4-Bis(2-methylstyryl)benzen (bis-MSB) enthält.

PPO



bis-(MSB)

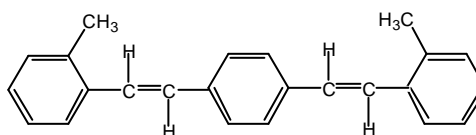


Abb. 18: Primär- und Sekundärszintillator.

In Abb. 19 sind die Quenchparameter von CaCl_2 in Abhängigkeit von der Zählausbeute grafisch dargestellt. Dazu wurden 0-450 μl CaCl_2 -Lösung (1 g/10 ml Wasser) mit je 10 μl ^{45}Ca -Standardlösung bekannter Aktivität und 10 ml Szintillator

versetzt und im Flüssigszintillationszähler gemessen. Die Abbildung macht deutlich, dass die Zählzählbeute durchschnittlich bei 89 % lag.

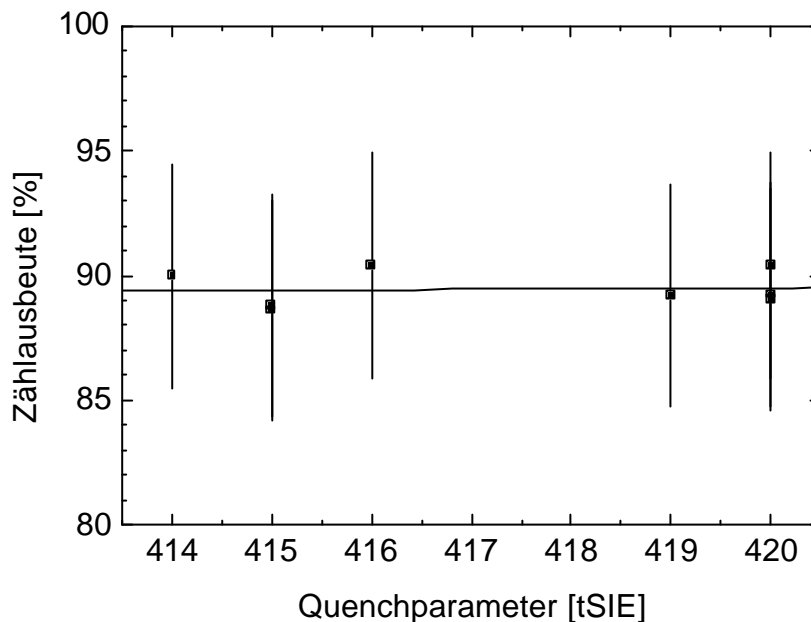


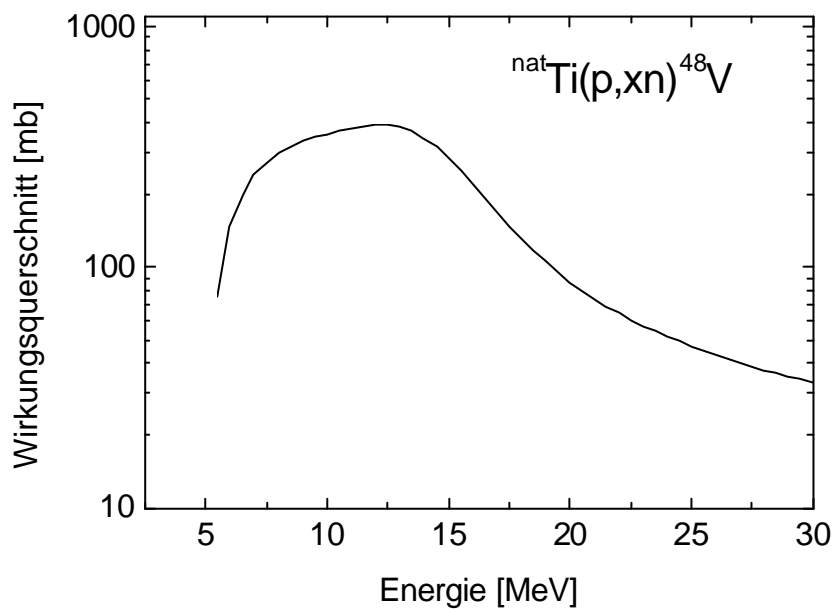
Abb. 19 Quencheffekt von CaCl_2 .

3.3 Bestimmung des Protonenflusses

Mit Hilfe eines Faraday-Cups kann man den Strahlstrom am Zyklotron direkt messen. Kerndaten werden allerdings bei niedrigen Strömen bestimmt, so dass es bei Strommessungen zu großen Fehlern kommt. Da die Zählleinrichtungen nicht ideal gegen andere äußere Ladungen isoliert sind, verfälschen freie Elektronen die Zählraten. Baut man jedoch dünne Metallfolien in den „Stack“ mit ein, so lässt sich der Stromfluss mittels Monitorreaktionen bestimmen. Nach der Bestrahlung wird die Aktivität dieser Folien γ -spektrometrisch bestimmt. Aufgrund ihrer hinreichend bekannten Wirkungsquerschnitte kann nun über die Aktivierungsgleichung der Teilchenfluss berechnet werden. Beispiele für solche Monitorreaktionen sind im Energiebereich bis 100 MeV ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x){}^{62}\text{Zn}$, ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x){}^{63}\text{Zn}$, ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x){}^{48}\text{V}$ oder ${}^{27}\text{Al}(p,x){}^{22}\text{Na}$ [19]. Die Protonenflüsse bis 200 MeV wurden mit Hilfe der von Michel et al. bestimmten ${}^{27}\text{Al}(p,3pn){}^{24}\text{Na}$ und ${}^{27}\text{Al}(p,3p3n){}^{22}\text{Na}$ Anregungsfunktionen [47] bestimmt. In Tabelle 8 sind die in dieser Arbeit benutzten Monitorreaktionen und deren Zerfallsdaten aufgelistet. Die Abbildungen 21 bis 25 zeigen die zur Flussbestimmung herangezogenen Anregungsfunktionen.

Tabelle 8 Zerfallsdaten der Monitorreaktion [8]

Monitorreaktion	$T_{1/2}$ des Produktkerns	γ -Energie [keV]	γ -Intensität [%]
${}^{\text{nat}}\text{Cu}(p,xn){}^{62}\text{Zn}$	9,26 h	596,7	25,7
${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,xn){}^{48}\text{V}$	15,98 d	983,5 1312,0	99,99 97,49
${}^{27}\text{Al}(p,x){}^{22}\text{Na}$	2,6 y	1274,5	99,94
${}^{27}\text{Al}(p,x){}^{24}\text{Na}$	14,96 h	1368,6 2754,0	100,0 99,94

Abb. 20 Anregungsfunktion der Reaktion ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,xn){}^{48}\text{V}$ [19].

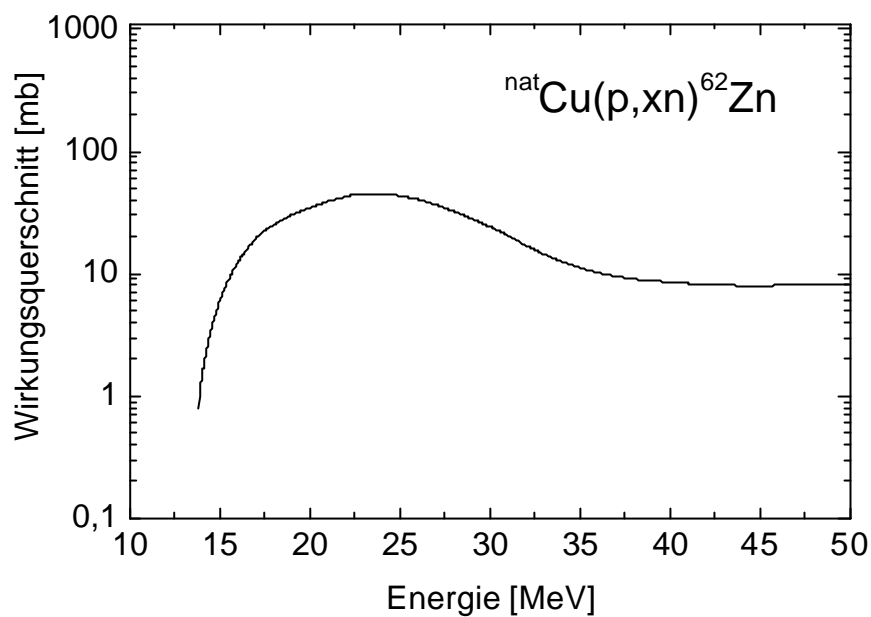


Abb. 21 Anregungsfunktion der Reaktion ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x){}^{62}\text{Zn}$ [19].

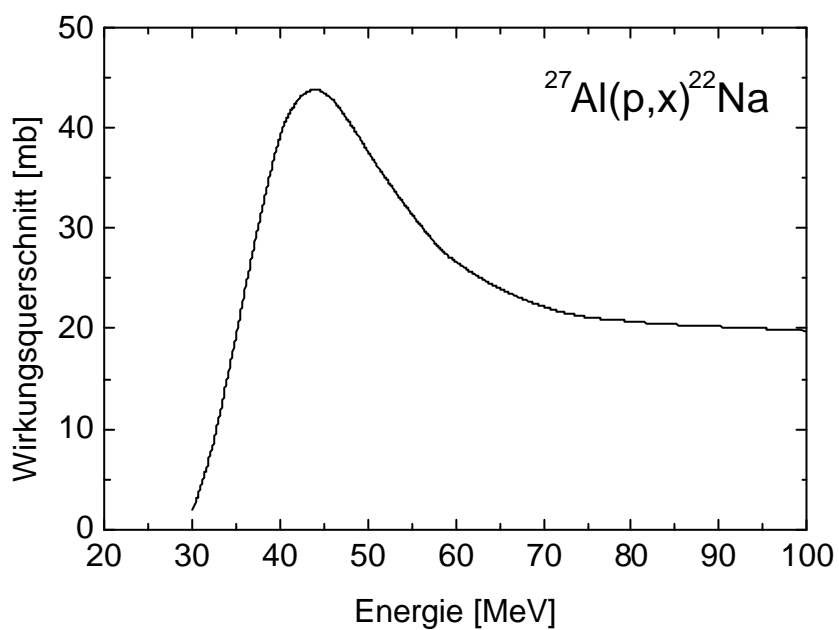


Abb. 22 Anregungsfunktion der Reaktion ${}^{27}\text{Al}(p,x){}^{22}\text{Na}$ [19].

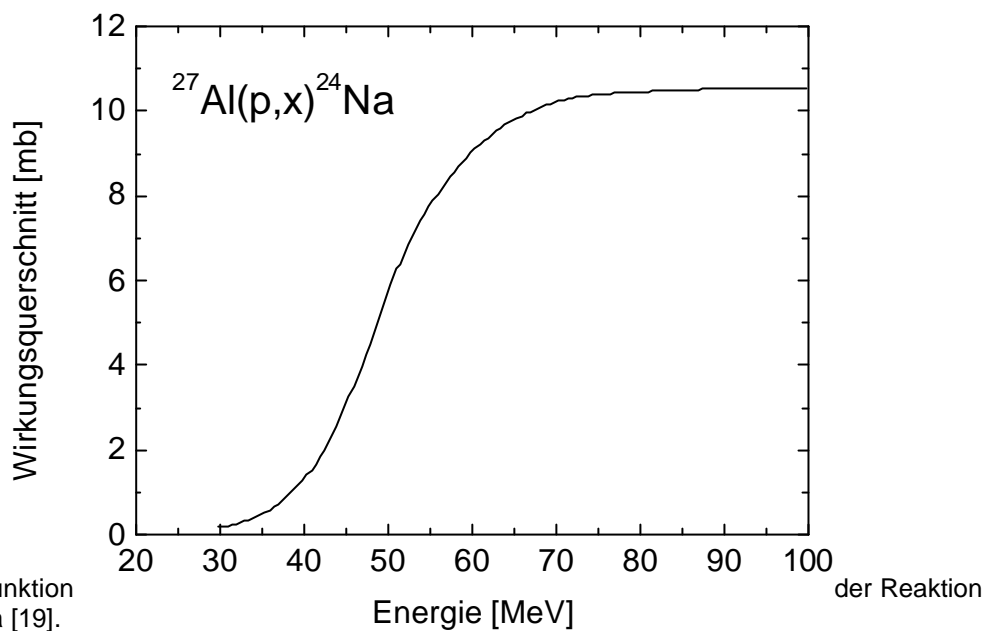


Abb. 23
Anregungsfunktion
 $^{27}\text{Al}(p,x)^{24}\text{Na}$ [19].

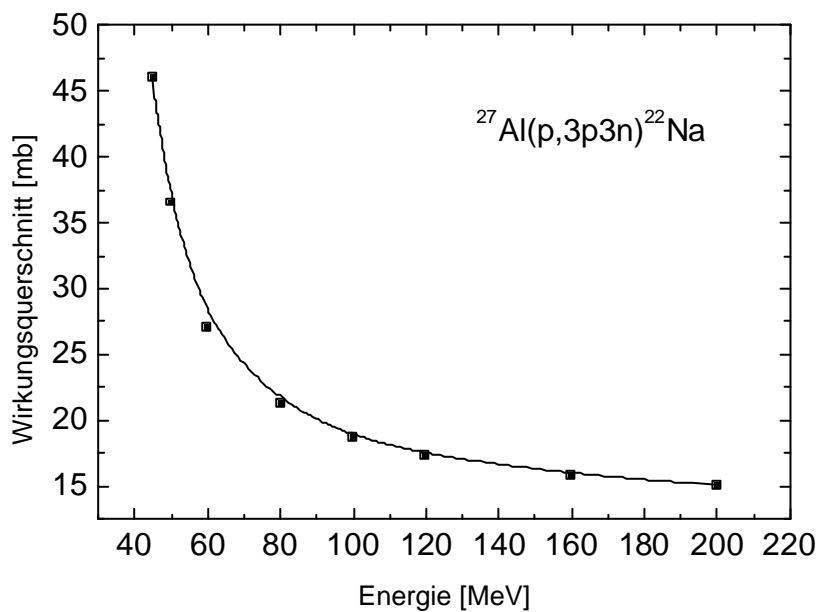


Abb. 24 Anregungsfunktion der Reaktion $^{27}\text{Al}(p,x)^{22}\text{Na}$ im oberen Energiebereich [47].

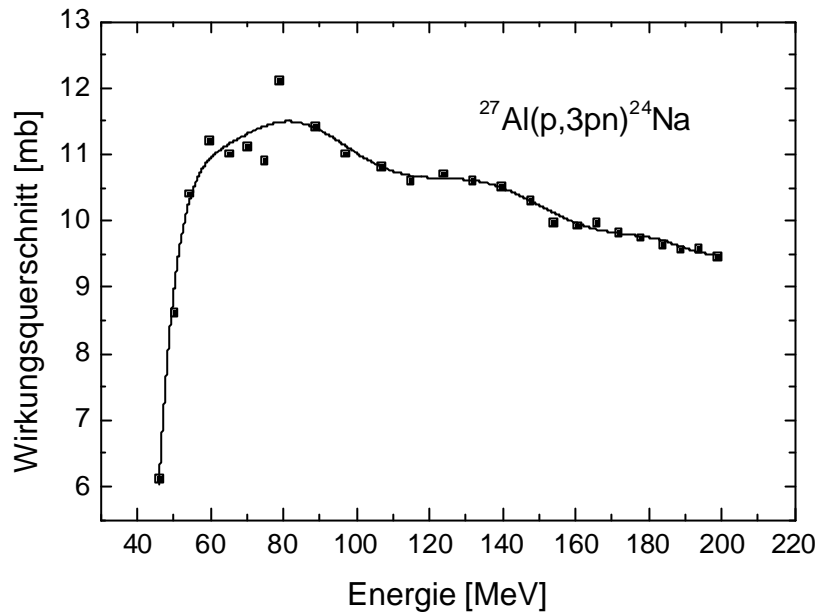


Abb. 25 Anregungsfunktion der Reaktion $^{27}\text{Al}(p,x)^{24}\text{Na}$ im oberen Energiebereich [47].

3.4 Bestimmung von Kernreaktionsdaten

3.4.1 Absolute Aktivität

Die Auswertung der γ - und Röntgenspektren liefert eine Peakfläche P der vom Detektor registrierten Impulse im Zeitraum T_{EOB} bis $T_{\text{EOB}}+T_{\text{live}}$. Dabei bedeuten T den Zeitpunkt des Messbeginns und T_{live} die effektive Messzeit. Wenn die Halbwertszeit eines radioaktiven Isotops im Vergleich zur Messdauer groß ist, dann ist normalerweise keine Korrektur nötig, die den Zerfall des betreffenden Nuklids während der Messung berücksichtigt. Ansonsten muss eine Zerfallskorrektur gemacht werden.

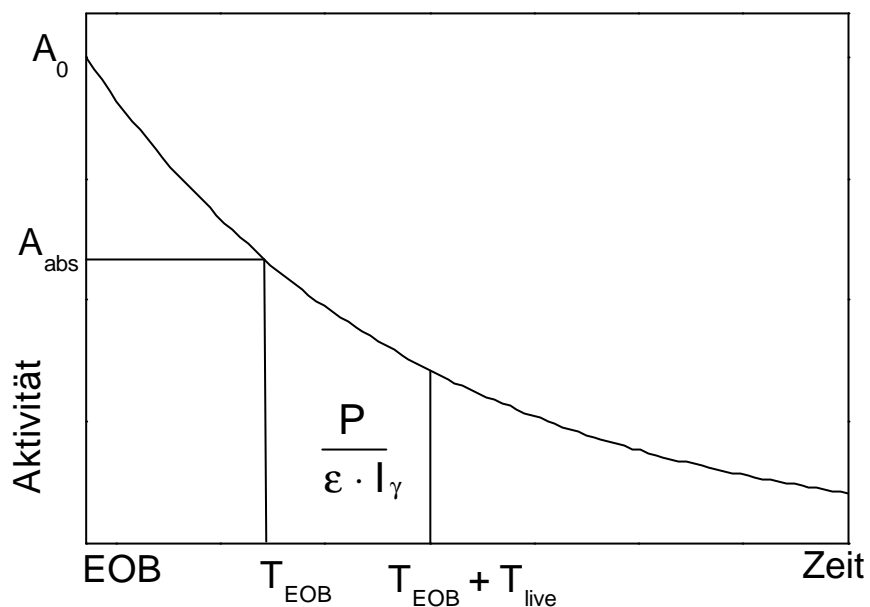


Abb. 26 Zur Veranschaulichung der Zerfallskorrektur.

Dividiert man die Peakfläche P durch die Detektoransprechwahrscheinlichkeit ε und die Emissionshäufigkeit I_γ der γ -Linie ergibt sich die Nuklidaktivität, vorausgesetzt, dass andere Korrekturen wie für Absorption, Koinzidenzverluste etc. vernachlässigbar sind. Für den zeitlichen Verlauf der Aktivität A gilt das exponentielle Zerfallsgesetz, wobei λ die Zerfallskonstante ist:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad \text{mit} \quad \lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \quad \text{Gl. 21}$$

Ausgehend von der Fläche unter der Kurve gilt die Gleichung:

$$\frac{P}{\varepsilon \cdot I_\gamma} = A \cdot e^{-\lambda T_{\text{EOB}}} \int_{T_{\text{EOB}}}^{T_{\text{EOB}} + T_{\text{live}}} e^{-\lambda t} dt \quad \text{Gl. 22}$$

Nach Integration ergibt sich hieraus:

$$\frac{P}{\varepsilon \cdot I_\gamma} = \frac{1}{\lambda} A \cdot e^{-\lambda T_{\text{EOB}}} (1 - e^{-\lambda T_{\text{live}}}) \quad \text{Gl. 23}$$

Die Ausgangsaktivität nach EOB ergibt sich dann zu

$$A_0 = \frac{P\lambda}{\varepsilon \cdot I_\gamma \cdot (1 - e^{-\lambda T_{\text{live}}})} e^{\lambda T_{\text{EOB}}} \quad \text{Gl. 24}$$

Für die absolute Aktivität zu Beginn der Messung gilt dann:

$$A_{\text{abs}} = \frac{P\lambda}{\varepsilon \cdot I_\gamma \cdot (1 - e^{-\lambda T_{\text{live}}})} \quad \text{Gl. 25}$$

Die Exponentialfunktion lässt sich in eine Reihe entwickeln:

$$e^{-x} = 1 - x + \frac{1}{2!}x^2 - \frac{1}{3!}x^3 + \dots \quad \text{Gl. 26}$$

Wenn die Messzeit im Vergleich zur Halbwertszeit sehr klein ist, dann wird der Exponent sehr klein und man kann die Reihe nach dem ersten Glied abbrechen. Man erhält als Näherung:

$$A_{\text{abs}} = \frac{P}{\varepsilon \cdot I_\gamma \cdot T_{\text{live}}} \quad \text{Gl. 27}$$

Mit Hilfe des Zerfallsgesetzes lässt sich dann die Aktivität am Ende der Bestrahlung (End of bombardment, EOB) berechnen (Gl. 21).

Bei Nukliden, die charakteristische γ -Linien aufweisen, wurden in der Regel drei Messungen durchgeführt. Anhand dieser Messungen wurde ein Mittelwert der Absolutaktivität bei EOB bestimmt.

Reine Positronenemitter haben keine charakteristischen γ -Linien. Bei der Positronenvernichtung werden überwiegend zwei Photonen im Winkel von 180° emittiert, die aufgrund der Einsteinschen Beziehung eine Energie von 511 keV haben. Zur Bestimmung der absoluten Aktivität kurzlebiger Positronenstrahler wurden im Anschluss an die Bestrahlungen Zerfallskurven über mehrere Halbwertszeiten aufgenommen. Es wurde dabei die Vernichtungsstrahlung detektiert. Um die vollständige Vernichtung der hochenergetischen Positronen zu gewährleisten, wurden die bestrahlten Proben während der Messung oben und unten mit 2 mm dicken Kupferblechen abgedeckt [48]. In logarithmischer Auftragung nähert sich die Kurve asymptotisch der Zerfallsgeraden des längstlebigen Isotops an. Die Extrapolation der Regressionsgeraden für $t \rightarrow \infty$ auf $t = t_{\text{EOB}}$ liefert die Anfangsaktivität des Nuklids. Bei Vorhandensein mehrerer Isotope zeigt sich ein komplexer Kurvenverlauf (Abb. 27). Hier ist es notwendig sukzessiv die

Anfangsaktivitäten der jeweils längstlebigen Isotope zu bestimmen und von der Gesamtaktivität abzuziehen.

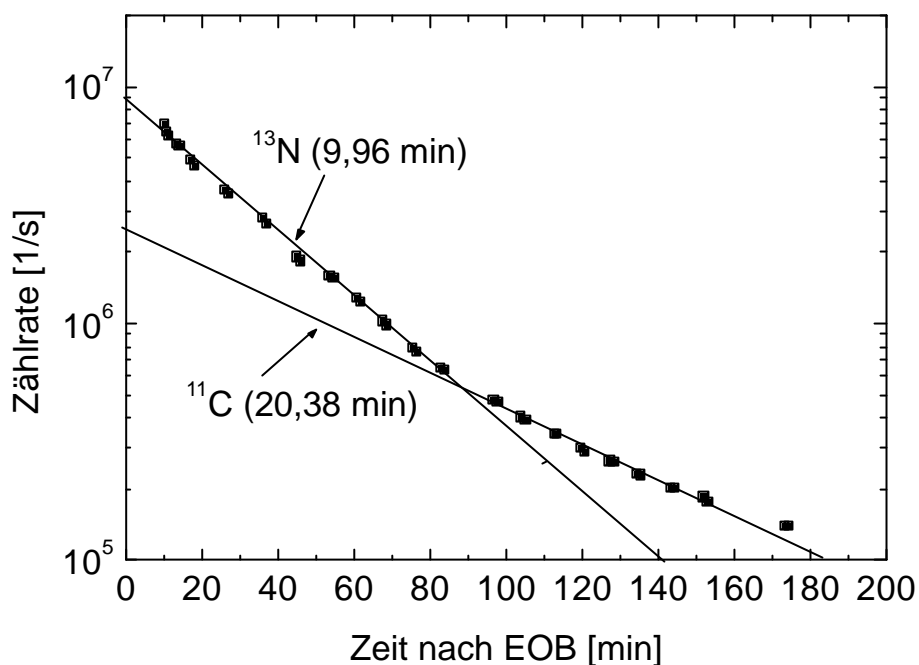


Abb. 27 Zerfallskurve eines Si_3N_4 -Targets. Durch protoneninduzierte Reaktionen an $^{\text{nat}}\text{N}$ entstehen die beiden Komponenten ^{13}N und ^{11}C .

Bei der β -Zählung und Flüssigszintillation werden Impulse pro Minute (cpm) detektiert. Rechnet man diese in Impulse pro Sekunde (cps) um, dividiert analog der γ -Spektrometrie durch die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors bzw. den Quenchparameter und die Emissionshäufigkeit, so erhält man die Aktivität. Anders als bei der γ -Spektrometrie muss bei der β -Aktivität noch die Selbstabsorption berücksichtigt werden.

3.4.2 Wirkungsquerschnitt

Aus der absoluten Aktivität am Bestrahlungsende A_{EOB} , dem Protonenfluss Φ , der Teilchenflächendichte N , der Bestrahlungsdauer t_{irr} , der Halbwertszeit $T_{1/2}$ und der Isotopenhäufigkeit H erhält man durch Umformen der Aktivierungsgleichung den Wirkungsquerschnitt σ für die betrachtete Kernreaktion:

$$\sigma = \frac{A_{\text{EOB}}}{\Phi \cdot N \cdot H \cdot \left(1 - e^{-\ln 2 \cdot \frac{t_{\text{irr}}}{T_{1/2}}}\right)} \quad \text{Gl. 28}$$

3.4.3 Betrachtung der Messunsicherheiten

Die Ermittlung der Messunsicherheiten beruhte auf der Grundlage des „Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement“ [49]. Unsicherheitskomponenten stammen aus der Flussbestimmung (10 %), der Detektoransprechwahrscheinlichkeit (3-8 %) und der Peakflächenbestimmung (5-8 %). Bei den Positronenemittern muss noch die Unsicherheit aus der Analyse der Zerfallsgeraden, die für ^{11}C ca. 15 % und für ^{13}N etwa 25 % beträgt, berücksichtigt werden. Alle Unsicherheitsbeiträge, die aufgrund von Wägeunsicherheiten und Zeitmessungen auftreten können, waren im Bereich von 0,1 % angesiedelt und wurden daher vernachlässigt.

Die Gesamtunsicherheit ergab sich aus der Wurzel der Quadratsumme aus allen vorkommenden relativen Unsicherheiten Δu_i . Zusätzlich wurden noch die statistischen Unsicherheiten von Mehrfachmessungen sowie die sich aus den linearen Regressionen der Zerfallsgeraden ergebenden Unsicherheiten berücksichtigt. Eine Auflistung dieser Unsicherheitsbeiträge ist in Tabelle 9 dargestellt.

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \sqrt{\left(\sum \left(\frac{\Delta u_i}{u_i} \right)^2 + \left(\frac{\Delta f}{f} \right)^2 \right)} \quad \text{Gl. 29}$$

mit Δf : Standardabweichungen bei Wiederholungsmessungen

Drei Effekte tragen zur Unsicherheit der Protonenenergie einer Probe bei. Zunächst sind die primären Protonen nicht monoenergetisch, sondern besitzen eine Unsicherheit ΔE_{Beam} . Da die Bremsung der Protonen ein statistischer Prozess ist und die Protonen zu Beginn eine Energieverteilung besitzen, kommt es zu einer Verbreiterung dieser Energieverteilung, die als gaußförmig angenommen wird. Der statistische Charakter der Energieverbreiterung bewirkt eine zusätzliche Unsicherheit ΔE_{Strag} . Als drittes muss berücksichtigt werden, dass sich die Energie innerhalb jeder Folie deutlich ändert. Daher muss als maximale Unsicherheit ΔE_{Foil} die Hälfte des gesamten Energieverlustes innerhalb einer Folie angesetzt werden. Damit folgt für die Unsicherheit der berechneten Energie der Protonen:

$$\Delta E = \sqrt{(\Delta E_{\text{Beam}})^2 + (\Delta E_{\text{Strag}})^2 + (\Delta E_{\text{Foil}})^2} \quad \text{Gl. 30}$$

Die Unsicherheit der Protonenenergie war am höchsten für die hinten im Stack platzierten Proben.

Tabelle 9 Unsicherheitsbeiträge bei der Bestimmung der Wirkungsquerschnitte

Unsicherheitskomponenten		Fehler [%]
Emissionshäufigkeit der γ -Linie		0,5
Monitorreaktion		10
Nettopeakfläche	511 keV Line	8
	übrige γ -Linien	5
	Röntgenlinien	8
β -Zählung		5
Detektor- Ansprechwahrscheinlichkeit	HPGe Detektor	3-5
	Durchflusszähler	5-8
	LSC	3-5
Analyse Zerfallskurve	^{11}C	15
	^{13}N	25
Mehrfachmessungen		2
Lineare Regression		0,5-2
Bereich der Quadratsummenwurzeln		12-30
Projektilenergie		1-4 MeV

3.5 Chemische Trennungen

Für die Ermittlung der β - und Röntgenaktivität mussten dünne Proben zur Verringerung der Selbstabsorption hergestellt werden. Deshalb wurde zunächst eine chemische Trennung der entstandenen Radionuklide durchgeführt.

3.5.1 Trennung Ti/V/Ca

Die bestrahlte Titanfolie wurde mit 20 mg wasserfreiem CaCl_2 , 10 mg Vanadiumpulver und 20-30 mg Graphit in ein Porzellanschiffchen gegeben. Graphit ist zur Reduktion von evtl. vorhandenen Spuren Titandioxids anwesend. Das Schiffchen wurde in ein Ausheizrohr aus Quarz geschoben und im Chlorgasstrom mit 2 Bunsenbrennern 1 Stunde erhitzt. Durch die Reaktionswärme erhitze sich die Ti-Folie auf Rotglut. Das gebildete TiCl_4 und VCl_4 (und möglicherweise VOCl_3)

destillierte in die Vorlage, in welcher sich 500 µl 10 %iger Zitronensäure in 12 M HCl befanden [nach 50].

Trennung Ca/Sc

Nachdem die Apparatur abgekühlt war stoppte man den Gasstrom und zog das Schiffchen vorsichtig heraus. Es wurde in einen 25 ml Messzylinder geschoben, mit 5 ml konz. HCl versetzt und 15 min stehen gelassen. Anschließend wurde der Messzylinder auf 25 ml mit Wasser aufgefüllt und nochmals 15 min stehen gelassen. Danach wurde Graphit über einen Faltenfilter abfiltriert. Das Schiffchen wurde zweimal mit Wasser gewaschen und die Filtrate vereint. Nach Zugabe von ca. 20 mg Sc-Träger wurde die Lösung auf pH 8,5 mit NH_3 eingestellt, 30 min gerührt und anschließend zentrifugiert. Das Zentrifugat wurde angesäuert, wieder mit Sc versetzt und $\text{Sc}(\text{OH})_3$ erneut gefällt. Von dem Zentrifugat wurde ein 1 ml Aliquot abgenommen, mit 10 ml Szintillatorlösung versetzt und im Flüssigszintillationsspektrometer wurde die Aktivität bestimmt. Das restliche Zentrifugat wurde mit HCl angesäuert, mit einer 80 °C warmen 2,6 M Ammoniumoxalat-Lösung tropfenweise versetzt und mit NH_3 alkalisch gemacht. Nach 2 h wurde $\text{CaC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ mit Hilfe eines Porzellanfiltratiegels abgefiltert. Der Niederschlag wurde nacheinander mit 0,1 %iger $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ -Lösung, mit wenig heißem Wasser und 3 Mal mit trockenem Aceton gewaschen und bei 100 °C 90 min getrocknet. 10 mg $\text{CaC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ wurde auf einem Al-Schälchen mit wenigen Tropfen Wasser zu einem Brei verrührt, im Excikator bei Raumtemperatur getrocknet und dann die Aktivität im Durchflussproportionalzähler bestimmt. Die ^{45}Ca -Aktivität wurde also zum einem über Flüssigszintillationszählung und zum anderen mittels eines low-level Antikoinzidenz- β^- -Zählers ermittelt.

Trennung Ti/V

Das Quarzrohr wurde mit 10 %iger Zitronensäure gespült und diese Spüllösung sowie die Ti-V-Lösung der Vorlage auf eine Austauschersäule mit dem Kationenaustauscher Dowex 50 W-X8 (100-200 mesh, Cl^- Form, Harzbett 15 mm Ø, 220 mm lang) gegeben, die vor jeder Trennung mit 0,01 M H_2SO_4 konditioniert wurde. Zuerst wurden mit 150-200 ml 0,01 M H_2SO_4 alle Anionen ausgewaschen, danach eluierte man Vanadium mit 1 % $\text{H}_2\text{O}_2/0,01$ M H_2SO_4 . Das auf der Säule fixierte Ti wurde mit 1 % $\text{H}_2\text{O}_2/0,5$ M H_2SO_4 runtergewaschen [51, 52].

Das Vanadiumeluat wurde zur Trockene eingedampft und in 200 ml 0,5 M H_2SO_4 aufgenommen. Nachdem die Lösung abgekühlt war fügte man 550 μl konz. H_2SO_4 zu und tropfte unter Rühren frisch bereitete 6 %ige Kupferronlösung (Nitrophenylhydroxylaminammonium) zu, bis sich ein weißer Niederschlag bildete, der sich beim Umrühren wieder auflöste. 2-3 ml Kupferron wurden im Überschuss zugesetzt und das gebildete Vanadiumkupferronat abgenutscht. Der Niederschlag wurde in einem Porzellantiegel bei 600 °C zu Vanadiumpentoxid geglüht [53]. Zur Anfertigung eines dünnen Messpräparats wurde eine Unterlegscheibe mit 1 cm Innendurchmesser auf Mylarfolie geklebt und das erhaltene V_2O_5 in die Aussparung gefüllt. Die Aktivität wurde röntgenspektrometrisch untersucht.

Ausbeutebestimmung

V_2O_5 wurde in 0,5 M H_2SO_4 gelöst und mit 4 M HCl auf 25 ml verdünnt. Nach Zusatz von 10 ml 0,1 %iger N-Benzoyl-N-phenylhydroxylamin (BPH) Lösung in CHCl_3 extrahierte man und ließ dann 2 min zur Phasentrennung stehen. Der organische Extrakt wurde in ein 50 ml Becherglas, indem 1,5 g Na_2SO_4 vorgelegt waren, abgelassen. Die wässrige Phase wurde noch 2 Mal mit je 5 ml CHCl_3 gewaschen, in das Becherglas abgelassen und danach der vereinigte organische Extrakt in einen 25 ml Messzylinder dekantiert. Man wusch das Becherglas und Na_2SO_4 mit wenig CHCl_3 , überführte es ebenfalls in den Messzylinder und füllte auf 25 ml auf. Die photometrische Bestimmung im Extrakt erfolgt bei 525 nm in einer 1 cm Küvette gegen BPH-Lösung [54]. Die Extinktionskurven des purpurfarbenen Komplexes bei 525 nm einer V_2O_5 -Standardlösung wurde bei verschiedenen Vanadiumkonzentrationen bestimmt (Abb. 29). Die Extinktion wurde gegen die Vanadiumkonzentration aufgetragen und eine lineare Regression durchgeführt (Abb. 30).

Die Trennung von Titan, Calcium und Vanadium ist in einem Fließschema in Abb. 28 dargestellt.

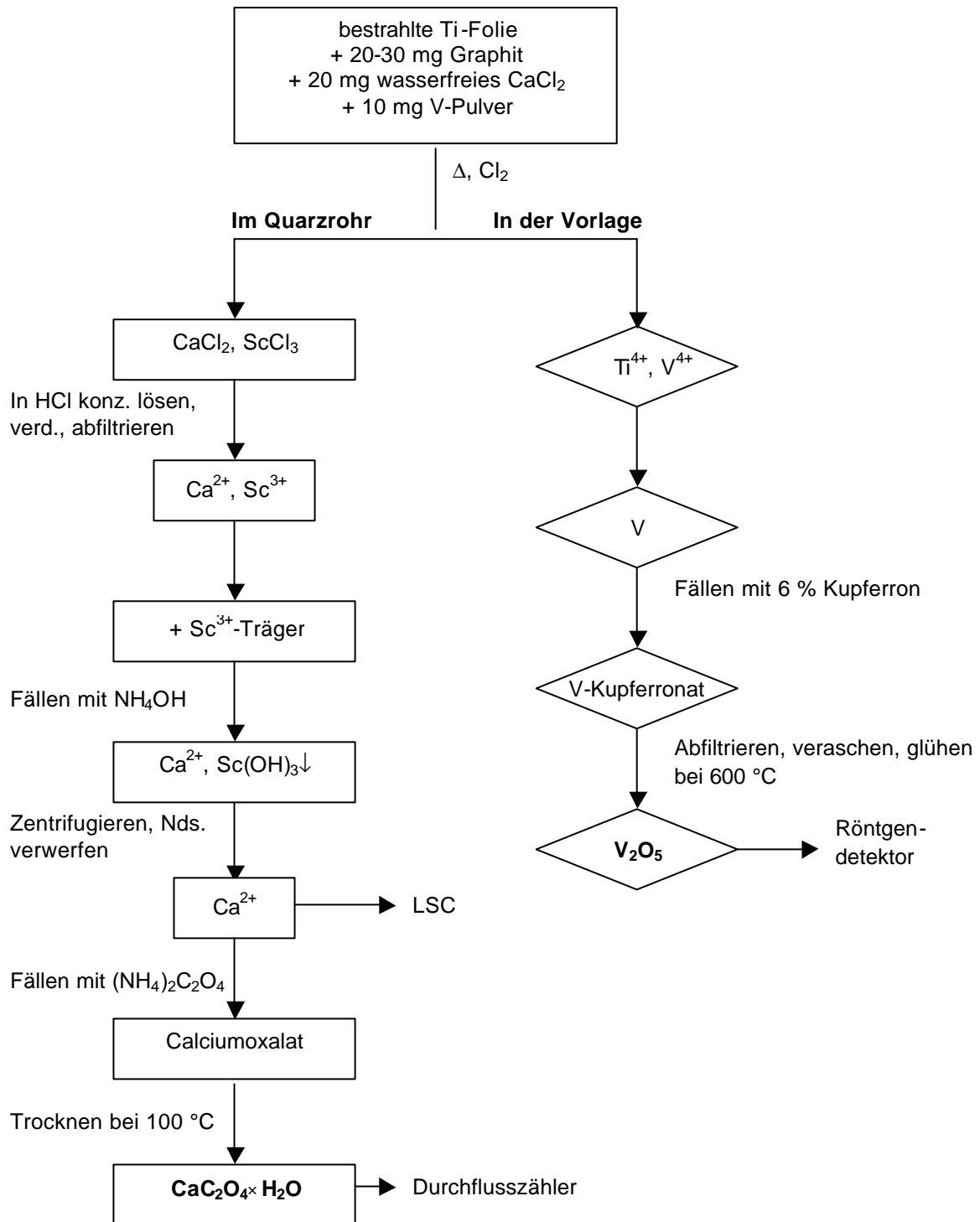


Abb. 28 Flussdiagramm zur Trennung von Ti/V/Ca.

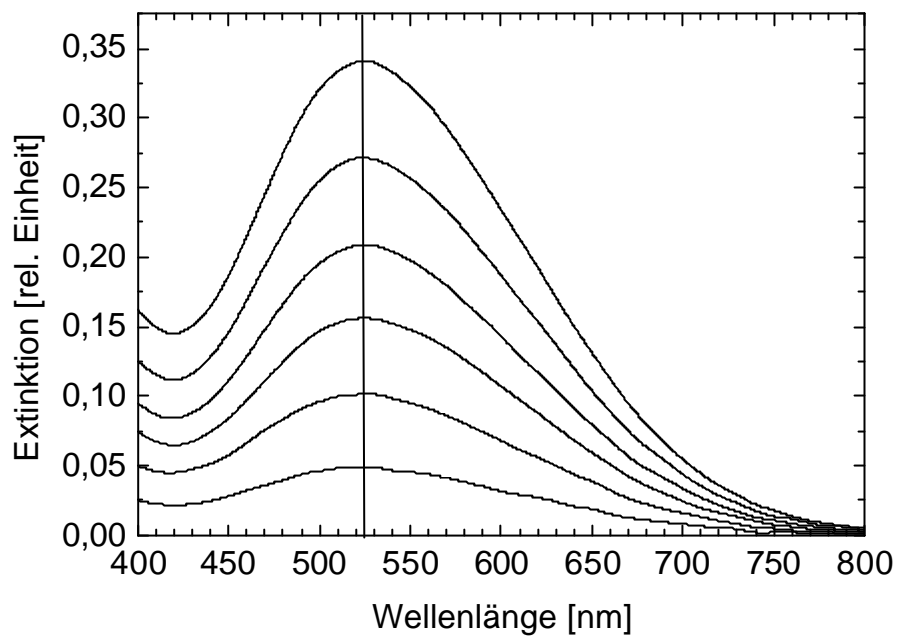


Abb. 29 Extinktionskurve von V(V) + N-Benzoyl-N-phenylhydroxylamin in CHCl_3 .

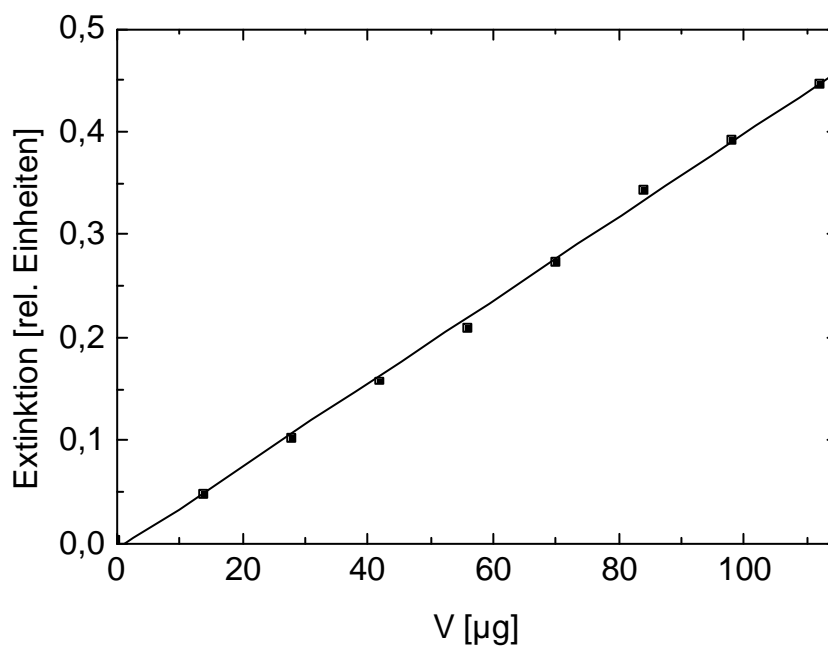


Abb. 30 Kalibrierungskurve zur Ausbeutebestimmung der Vanadiumtrennung via UV-VIS Spektroskopie.

3.5.1.1 Nachweis von ^{45}Ca

Zum Nachweis von Ca-45 wurde die Zählrate einer Probe über mehrere Halbwertszeiten bestimmt und gegen die Zeit aufgetragen (Abb. 31). Durch eine nichtlineare Kurvenanpassung wurde eine Halbwertszeit von $T_{1/2} = 164 \text{ d}$ grafisch bestimmt, die mit der Halbwertszeit von Ca-45 ($T_{1/2} = 163 \text{ d}$) gut übereinstimmt.

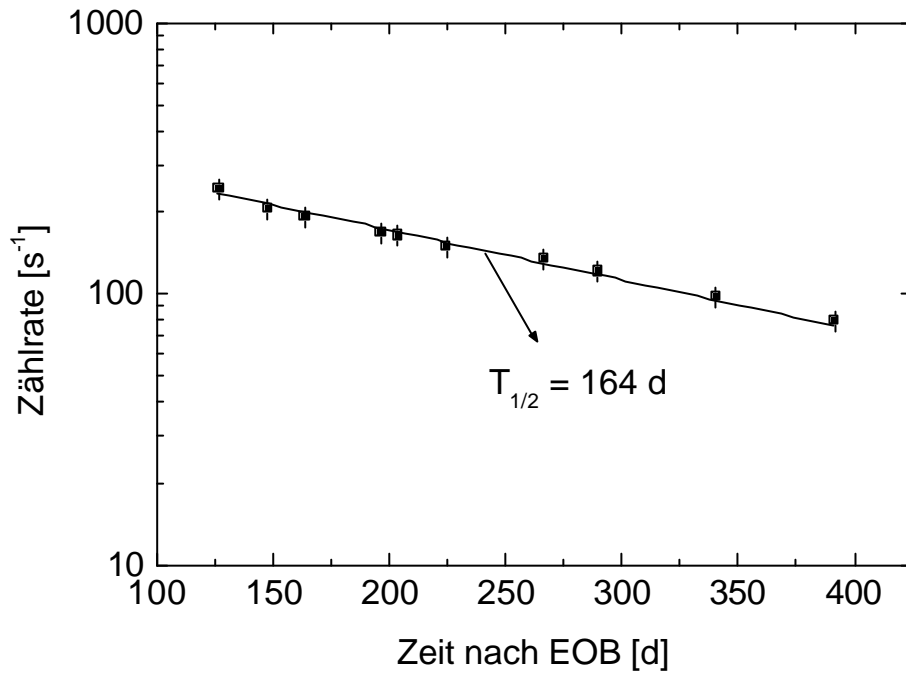


Abb. 31 Zerfallskurve einer ^{45}Ca -Probe. Die Zählrate wurde per β^- -Zählung ermittelt.

3.5.1.2 Nachweis von ^{49}V

^{49}V wurde wie ^{45}Ca (3.5.1.1 Nachweis von ^{45}Ca) über eine nichtlineare Kurvenanpassung der Zerfallskurve nachgewiesen (Abb. 32).

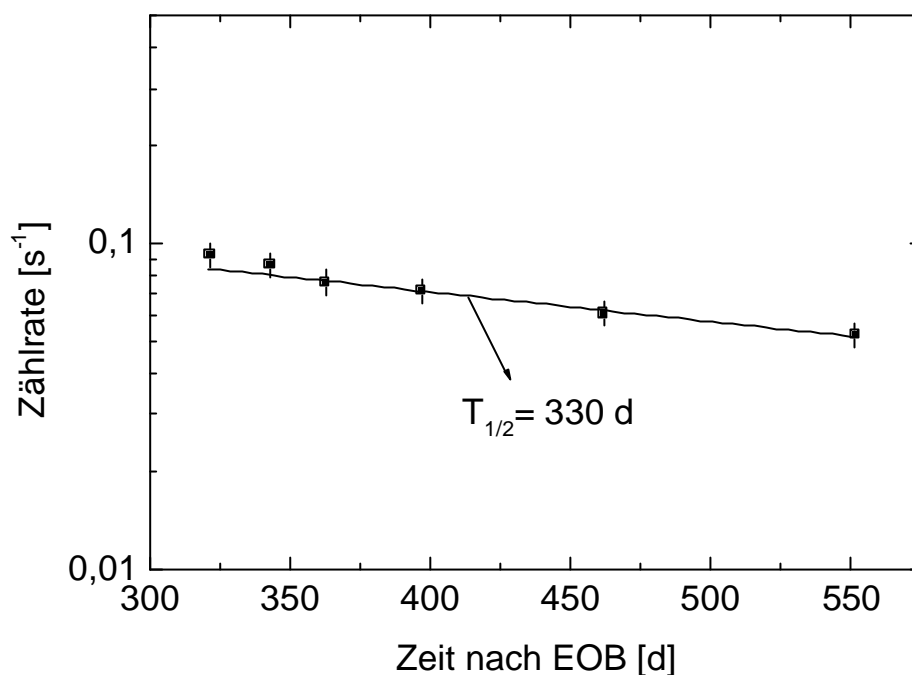


Abb. 32 Zerfallskurve einer ^{49}V -Probe. Die Zählrate wurde per Röntgenspektrometrie ermittelt.

3.5.2 Trennung Pb(II) und Tl(I)

Eine Säule mit DOWEX 50WX4-50 (50 mesh, H^+ -Form, Harzbett 15 mm \varnothing , 220 mm lang) wurde mit konzentrierter Natriumchloridlösung gespült bis alle Protonen durch Natriumionen ausgetauscht waren. Danach wurde mit destilliertem Wasser gewaschen bis alle Chloridionen entfernt waren. Nach dieser Vorbereitung wurde das Austauscherharz mit einer alkalischen Glycerinlösung (1 M NaOH und 1 M Glycerin) gewaschen um lokale Niederschläge unlöslicher Hydroxokomplexe zu vermeiden.

Die bestrahlte Bleifolie wurde in 0,5 M HNO_3 gelöst und anschließend mit 1 ml TlNO_3 -Lösung (20 mg/ml) geträgert. Die Lösung wurde mit der alkalischen Glycerinlösung versetzt, und auf die Säule gegeben. Die Thalliumionen wurden an dem Kationenaustauscherharz adsorbiert während die anionischen Blei-Glycerin-komplexe eluierten. Das Harz wurde mit alkalischer Glycerinlösung gewaschen, bis keine Bleiionen mehr eluierten.

Die Säule wurde nun mit destilliertem Wasser neutral gewaschen und Tl(I) mit 600 ml 1 M $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ -Lösung eluiert. Das Eluat wurde auf 100-150 ml konzentriert, 1 ml Eluat zur chemischen Ausbeutebestimmung entnommen und Thallium gravimetrisch als Iodid gefällt. Das Austauscherharz wurde mit 2 M NaCl Lösung regeneriert [55].

Thalliumiodid wurde über einen Celluloseacetatfilter abgenutscht und der Filter im Proportionalzähler gemessen. Den schematischen Arbeitsgang zur Trennung von Blei und Thallium zeigt das Flussdiagramm in Abb. 35.

Aubeutebestimmung

100 µl Probelösung versetzte man in einem 100 ml Schütteltrichter mit 5 ml 6 M HCl, 1 ml 0,1 %iger $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2$ -Lösung in 0,45 M H_2SO_4 sowie 1 ml 10 %iger KBr-Lösung, verdünnte mit Wasser auf 30 ml, schüttelte kräftig, reduzierte nach 10 min den $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2$ -Überschuß mit 1 ml 0,01 %iger Hydroxylaminsulfatlösung (täglich frisch hergestellt) und fügte sofort 1 ml 0,1 %ige Rhodamin B-Lösung hinzu. Es wurde kräftig geschüttelt, 5 min stehen gelassen, mit 5 ml Diisopropylether 3 min bei 20 °C extrahiert, die wässrige Phase verworfen, der organische Extrakt zentrifugiert und sofort in einer 1 cm Küvette bei 552,5 nm gegen Diisopropylether photometriert [56]. Die Extinktionskurven des purpurfarbenen Komplexes einer TlNO_3 -Standardlösung wurden bei 552,5 nm von verschiedenen Thalliumkonzentrationen bestimmt (Abb. 33). Die Extinktion wurde gegen die Thalliumkonzentration aufgetragen und eine lineare Regression durchgeführt (Abb. 34).

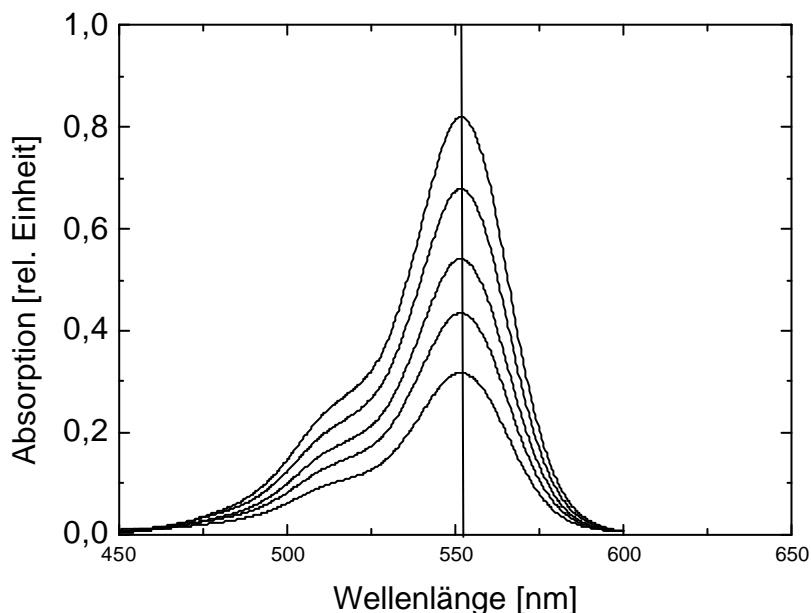


Abb. 33 Extinktionskurve von $[\text{TlBr}_4]^- [\text{RB}]^+$.

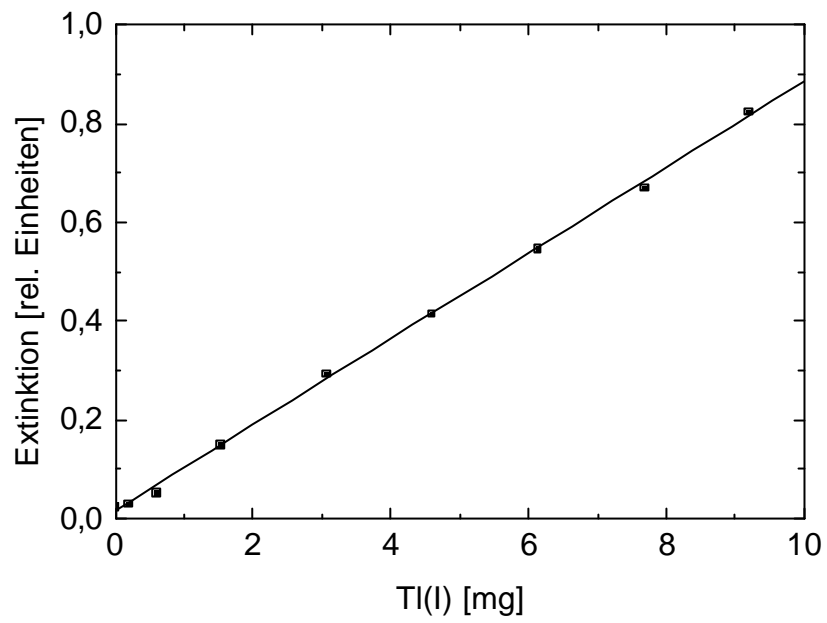


Abb. 34 Kalibrierungskurve zur Ausbeutebestimmung der Thalliumtrennung via UV-VIS Spektroskopie.

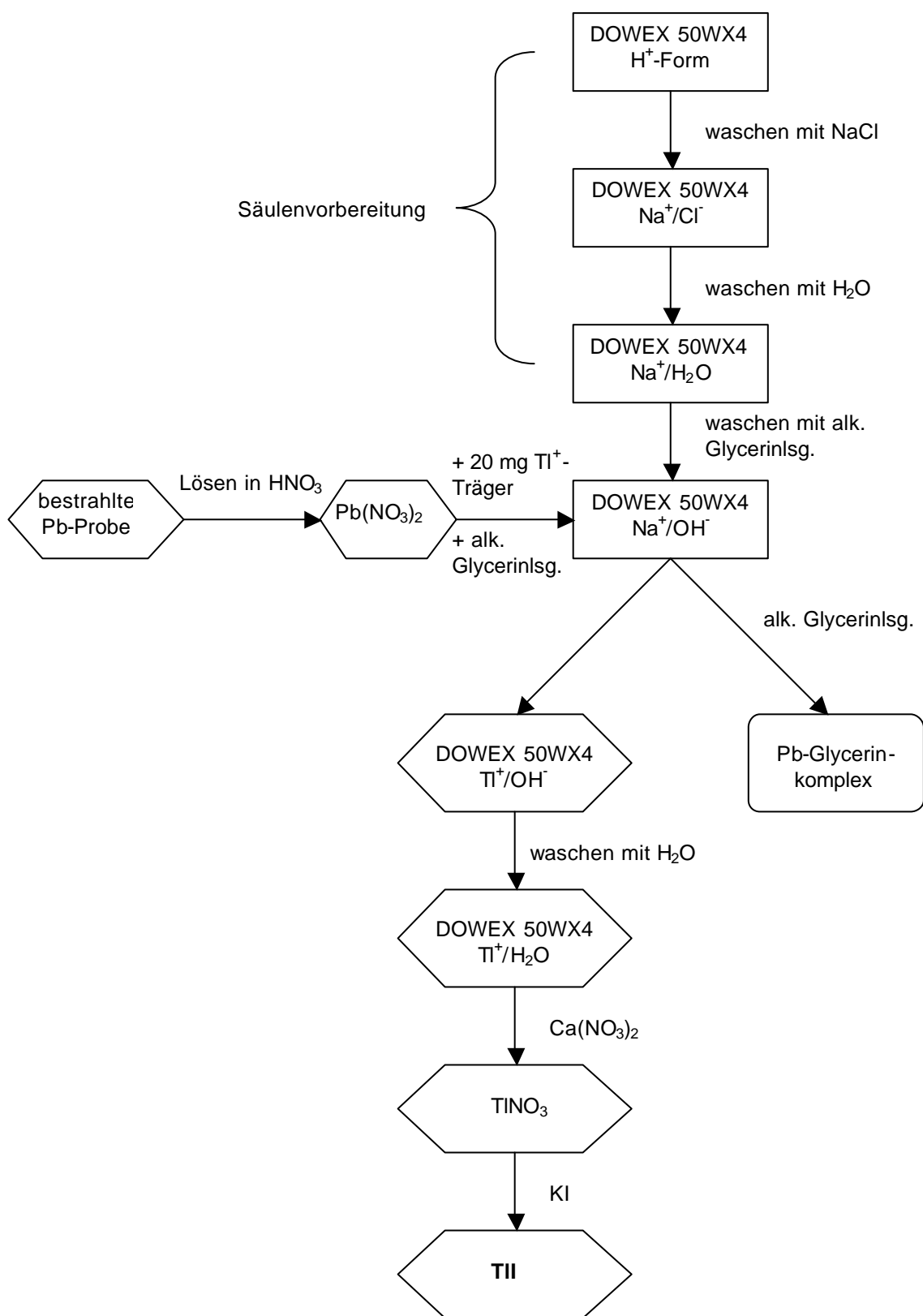


Abb. 35 Flussdiagramm zur Trennung von Pb und Tl.

3.5.2.1 Nachweis von ^{204}Tl durch Bestimmung der maximalen β -Energie durch Absorptionmessungen

Zur Bestimmung der maximalen Reichweite von β -Strahlern wurden die Impulsraten des Nuklids mit Al-Absorbern verschiedener Dicke bestimmt. Man trägt im logarithmischen Maßstab die Impulsraten einer Probe gegen die Absorberdicke auf. Abb. 36 zeigt die Absorptionskurve von ^{204}Tl . Um die maximale Reichweite zu bestimmen, wurde der mittlere Teil der Kurve auf die Abszisse extrapoliert. Dabei ist es üblich, etwa den 10^4 ten Teil der Anfangsaktivität als Abszisse zu wählen. Am Ende der Absorptionskurve verbleibt bei reinen β -Strahlern ein Anteil, der auch bei Erhöhung der Absorberschichtdicke nur wenig abnimmt und auf Bremsstrahlung zurückzuführen ist [57]. Dieser aus der Bremsstrahlung resultierende Anteil beträgt ca. 1 %.

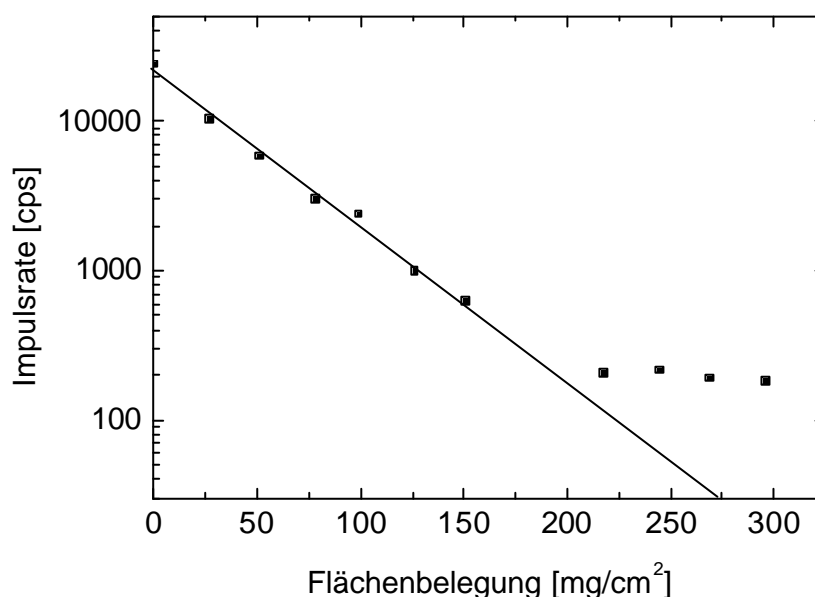


Abb. 36 β -Absorptionskurve von ^{204}Tl (Impulsrate in Abhängigkeit von der Flächenbelegung eines Al-Absorbers).

Aus der maximalen Reichweite kann die maximale Energie des β -Strahlers durch Näherungsformeln bestimmt werden. Nach Glendenin und Coryell [58] besteht folgender empirischer Zusammenhang zwischen der maximalen Reichweite R_{\max} und deren Grenzenergie E_{\max} :

$$R_{\max} = 542 \cdot E_{\max} - 133 \quad (R_{\max} \text{ in } \text{mg}/\text{cm}^2; E_{\max} \geq 0,8 \text{ MeV}) \quad \text{Gl. 31}$$

$$R_{\max} = 280,9254 \text{ mg}/\text{cm}^2$$

Aus Abb. 36 wurde eine maximale Reichweite von ungefähr 275 mg/cm^2 ermittelt. Berechnet man mit Gleichung 31 die dazugehörige maximale Energie so erhält man $0,75 \text{ MeV}$. Die maximale β -Energie von ^{204}Tl entspricht $0,76 \text{ MeV}$ und stimmt somit gut mit dem hier ermittelten Wert überein.

4 Kernmodellrechnungen

4.1 Der Rechencode ALICE-IPPE

Im Rahmen dieser Arbeit wurden in Zusammenarbeit mit Herrn Dr. Yu. N. Shubin aus Obninsk, Russland, Kernmodellrechnungen nach dem modifizierten Precompound Modell [59] durchgeführt. Dazu wurde der Rechencode ALICE-IPPE [60] verwendet. Bei diesem handelt es sich um die modifizierte ALICE-91 Version, die das generalisierte Superfluid-Modell [61-65] zur Abschätzung der Kernniveaudichten und das geometrieabhängige Hybridmodell [66] zur Clusteremission bei Precompound-Reaktionen verwendet. Bei der Emission von α -Teilchen werden sowohl „pick-up“- [67, 68] als auch „knockout“-Prozesse [69-71] berücksichtigt. Phänomenologische Näherungen beschreiben die direkte Emission von Deuteronen [60]. Nach dem „Pick-up“-Vereinigungsmodell [72] werden die Emissionsspektren von ^3H und ^3He berechnet. Bei der Abschätzung der Kernniveaudichten werden im Gegensatz zum Fermigas-Modell auch Nukleonenpaarungs- und Schaleneffekte berücksichtigt. Nach der Erreichung des Gleichgewichtszustandes wird die Abregung des Kerns durch die Abgabe von Nukleonen, Komplexeilchen oder γ -Quanten mit dem statistischen Weisskopf-Ewing-Modell beschrieben [73].

4.1.1 Parameterwahl

Zur Ausführung des Rechencodes ALICE-IPPE muss eine ASCII Input-Datei erstellt werden. Diese Datei enthält alle Parameter, die zur Ausführung des Programms und zum Erstellen einer Output-Datei benötigt werden. Der Minimalsatz an Parametern muss nur die Ladung und Masse des Projektils und des Targetkerns sowie die Energien, für die die Berechnungen durchgeführt werden sollen, enthalten. Für die leichten Kerne waren die statistischen Inputparameter aber schwierig zu benutzen, weil das Optische Modell und die Niveaudichten für diese Kerne nicht hinreichend genau bekannt sind. Sogar die Massenformeln sind mit großen Ungenauigkeiten behaftet. Deshalb wurden für die Targetelemente C, N und O verschiedene optionale Parameter benutzt:

Der Precompound-Anteil der Reaktionen wurde entweder nach dem Hybridmodell (hm) oder nach dem geometrieabhängigen Hybridmodell (gdh) berechnet und die Weisskopf-Ewing-Verdampfung lag dem Compoundkern-Anteil der Reaktion zu Grunde. Für die Modellrechnungen wurden, wenn es möglich war, experimentelle Nuklidmassen eingesetzt. Auch die Bindungsenergien und Q-Werte basierten soweit

wie möglich auf den experimentellen Massen. Die inversen Wirkungsquerschnitte und die Reaktionswirkungsquerschnitte wurden mit Hilfe des optischen Modells berechnet. Die Zustandsdichten wurden zum einen über das Fermigas-Modell (FG) und zum anderen über das Superfluid-Modell (SF) implementiert. Im Falle des Fermigas-Modells wurde der Niveaudichte-parameter $a = A/12$ gewählt. In manchen Fällen war es nötig einen Normierungsfaktor k einzuführen. Für $k = 1$ wurden die Reaktionswirkungsquerschnitte nach dem optischen Modell errechnet, und für $k \neq 1$ wurden die Reaktionswirkungsquerschnitte des optischen Modells mit dem entsprechenden Wert multipliziert. Es wurden verschiedene Arten der emittierten Teilchen (Neutronen, Protonen, Deuteronen, α -Teilchen, Tritonen, ^3He) zugelassen. Für Nukleonenpaarungsoptionen wurde entweder ein sog. „backshift“ oder „Standard Paarungsshift“ verwendet. In Tabelle 10 sind die optionalen Input-Parameter, die für die Kernmodellrechnungen eingesetzt wurden zusammengestellt.

Tabelle 10 Parameter für die Kernmodellrechnungen

Reaktion	Modell	Zustandsdichte	Niveaudichte-parameter a	Normierungsfaktor	Paarungsoption	emittierte Teilchen
$^{nat}\text{C}(p,x)^{11}\text{C}$	hm	FG	$A/12$	1	back-shift	n, p, α , d
$^{nat}\text{N}(p,x)^{11}\text{C}$	gdh	FG	$A/12$	1,3	standard	n, p, α , d
$^{nat}\text{O}(p,x)^{11}\text{C}$	gdh	SF	$A/9$	1	standard	n, p, α , t
$^{nat}\text{N}(p,x)^{13}\text{N}$	hm	SF	$A/9$	1	standard	n, p, α , d
$^{nat}\text{O}(p,x)^{13}\text{N}$	gdh	FG	$A/12$	1	standard	n, p, α , d

hm: hybrid model; gdh: geometry-dependent hybrid model
 FG: Fermi-gas model; SF: Superfluid model

Bei den Modellrechnungen für die Targetelemente Titan und Blei wurde das Fermigas-Modell zur Abschätzung der Kernniveaudichten und das geometrieabhängige Hybridmodell zur Clusteremissionen verwendet. Der Niveaudichte-parameter betrug im Falle von Blei $a = A/9$ und für Titan $a = A/12$. Für alle anderen optionalen Parameter wurden die Standard-Inputparameter [74, 75] verwendet.

4.1.2 Mittlere Reaktionswirkungsquerschnitte

Als Ergebnis der Berechnungen liefert ALICE-IPPE die direkten Reaktionswirkungsquerschnitte für ein monoisotopes Target für einen Restkern mit bestimmter

Protonen- und Neutronenzahl. Zum Vergleich der experimentell bestimmten kumulierten Wirkungsquerschnitte muss die Isotopenzusammensetzung der Targetkerne berücksichtigt werden. Wegen der geringen Häufigkeit von ^{13}C , ^{15}N , ^{17}O und ^{18}O wurden die Kernreaktionen an diesen Isotopen jedoch vernachlässigt.

5 Experimentelle Ergebnisse und Vergleich mit der Theorie

5.1 Wirkungsquerschnitte zur Bildung der kurzlebigen Positronenemitter ^{11}C und ^{13}N

In Tabelle 11 sind die ermittelten Wirkungsquerschnitte für die protoneninduzierten Kernreaktionen an Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff aufgeführt. Die experimentellen Unsicherheiten der Wirkungsquerschnitte lagen zwischen 20 und 30 %. Die wesentlichen Beiträge stammen dabei aus der Analyse der Zerfallskurven (15-25 %), der Flussbestimmung mittels Monitorfolien (10 %) sowie der Peakauswertung (5-8 %).

Tabelle 11 Wirkungsquerschnitte zur Bildung von ^{11}C und ^{13}N bei der Wechselwirkung von Protonen intermediärer Energien mit C, N und O

Graphit		Si_3N_4^*			SiO_2^*		
E [MeV]	$\sigma(^{11}\text{C})$ [mb]	E [MeV]	$\sigma(^{11}\text{C})$ [mb]	$\sigma(^{13}\text{N})$ [mb]	E [MeV]	$\sigma(^{11}\text{C})$ [mb]	$\sigma(^{13}\text{N})$ [mb]
$12,3 \pm 2,0$	$0,3 \pm 0,1$	$6,8 \pm 4,0$	$107,7 \pm 22$		$54,4 \pm 2,5$	$16,6 \pm 3$	$3,9 \pm 1$
$16,0 \pm 2,0$	$1,1 \pm 0,2$	$13,6 \pm 2,0$	$90,6 \pm 18$		$59,1 \pm 1,5$	$17,8 \pm 4$	$4,6 \pm 1$
$19,0 \pm 1,0$	$8,5 \pm 2$	$18,0 \pm 1,5$	$61,4 \pm 12$		$60,8 \pm 1,5$	$18,5 \pm 4$	
$30,8 \pm 3,0$	$93,9 \pm 19$	$23,4 \pm 3,0$		$31,8 \pm 9$	$65,8 \pm 1,0$	$21,2 \pm 4$	
$33,5 \pm 2,5$	$107,9 \pm 22$	$27,8 \pm 3,0$		$28,2 \pm 8$	$65,7 \pm 1,0$	$22,2 \pm 4$	$3,9 \pm 1$
$36,7 \pm 2,5$	$104,9 \pm 21$	$27,9 \pm 2,5$	$25,1 \pm 5$		$71,1 \pm 1,0$	$18,4 \pm 4$	
$39,2 \pm 2,0$	$118,0 \pm 24$	$29,6 \pm 3,0$	$15,3 \pm 3$	$21,2 \pm 6$	$89,6 \pm 3,0$	$17,0 \pm 3$	$5,2 \pm 2$
$42,1 \pm 1,5$	$98,1 \pm 20$	$33,5 \pm 2,5$	$15,8 \pm 3$	$13,2 \pm 4$	$94,5 \pm 2,0$	$17,2 \pm 3$	$3,8 \pm 1$
$44,9 \pm 1,0$	$106,0 \pm 21$	$33,9 \pm 2,5$	$18,5 \pm 4$		$182,8 \pm 2,0$	$12,5 \pm 3$	$2,3 \pm 1$
$54,8 \pm 2,5$	$101,7 \pm 20$	$36,0 \pm 1,0$		$12,2 \pm 4$	$189,2 \pm 2,0$	$12,2 \pm 2$	$3,9 \pm 1$
$55,1 \pm 2,5$	$77,8 \pm 16$	$37,2 \pm 2,0$	$15,8 \pm 3$	$8,3 \pm 2$	$199,4 \pm 1,0$	$13,6 \pm 3$	$4,6 \pm 1$
$60,7 \pm 2,0$	$103,4 \pm 22$	$39,7 \pm 1,5$		$15,8 \pm 5$			
$60,9 \pm 2,0$	$81,1 \pm 16$	$42,8 \pm 1,0$	$16,6 \pm 3$	$6,8 \pm 2$			
$66,1 \pm 1,5$	$108,2 \pm 22$	$42,9 \pm 1,0$		$6,2 \pm 2$			
$66,4 \pm 1,5$	$78,7 \pm 16$	$50,6 \pm 3,0$	$17,3 \pm 3$				
$71,5 \pm 1,0$	$84,8 \pm 17$	$54,1 \pm 2,5$	$29,1 \pm 6$				
$177,0 \pm 3,0$	$42,0 \pm 8$	$58,1 \pm 2,0$	$19,2 \pm 4$	$2,3 \pm 1$			
$185,9 \pm 2,0$	$43,0 \pm 9$	$59,2 \pm 2,0$	$28,2 \pm 6$				
$199,8 \pm 1,0$	$43,2 \pm 9$	$64,9 \pm 1,0$	$16,9 \pm 3$				
		$70,3 \pm 1,0$	$26,2 \pm 5$				
		$88,9 \pm 3,0$	$14,9 \pm 3$	$0,8 \pm 0,2$			
		$94,0 \pm 2,0$	$14,4 \pm 3$				
		$98,8 \pm 0,5$	$15,0 \pm 3$				
		$133,8 \pm 3,0$	$16,5 \pm 3$				
		$145,2 \pm 1,5$	$15,2 \pm 3$				
		$175,1 \pm 3,0$	$13,2 \pm 3$				
		$187,5 \pm 2,0$	$12,0 \pm 4$				
		$200,7 \pm 1,0$	$14,4 \pm 3$				

* Si trägt nicht zur Bildung von ^{11}C und ^{13}N bei.

Die Tabelle 12 gibt die Energiebilanz für die im Hinblick auf die Protonentherapie relevanten Kernreaktionen im Gewebe wieder. Wegen der geringen Isotopenhäufigkeiten von ^{13}C (1,1 %), ^{15}N (0,366 %), ^{17}O (0,038 %) und ^{18}O (0,20 %) wurden die protoneninduzierten Kernprozesse an diesen Isotopen bei den Kernmodellrechnungen vernachlässigt.

Tabelle 12 Energiebilanz der (p,x) Reaktionen an ^{12}C , ^{14}N , ^{16}O

Reaktion	Q-Wert [MeV]	E_S [MeV]	E_c [MeV]
$^{12}\text{C}(p,pn)^{11}\text{C}$	-18,72	20,29	
$^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$	-2,92	3,13	3,49
$^{14}\text{N}(p,pt)^{11}\text{C}$	-22,74	24,37	
$^{14}\text{N}(p,n^3\text{He})^{11}\text{C}$	-23,5	25,19	
$^{14}\text{N}(p,2d)^{11}\text{C}$	-26,77	28,69	
$^{14}\text{N}(p,npd)^{11}\text{C}$	-28,99	31,08	
$^{14}\text{N}(p,2n2p)^{11}\text{C}$	-31,22	33,47	
$^{14}\text{N}(p,d)^{13}\text{N}$	-8,33	8,93	3,49
$^{14}\text{N}(p,pn)^{13}\text{N}$	-10,55	11,31	
$^{16}\text{O}(p,d\alpha)^{11}\text{C}$	-23,66	25,15	3,80
$^{16}\text{O}(p,np\alpha)^{11}\text{C}$	-25,88	27,51	
$^{16}\text{O}(p,t^3\text{He})^{11}\text{C}$	-37,98	40,37	
$^{16}\text{O}(p,pdt)^{11}\text{C}$	-43,47	46,21	
$^{16}\text{O}(p,np^3\text{He})^{11}\text{C}$	-44,24	47,02	
$^{16}\text{O}(p,n2pt)^{11}\text{C}$	-45,70	48,58	
$^{16}\text{O}(p,2np^3\text{He})^{11}\text{C}$	-46,46	49,39	
$^{16}\text{O}(p,3d)^{11}\text{C}$	-47,51	50,50	
$^{16}\text{O}(p,np2d)^{11}\text{C}$	-49,73	52,86	
$^{16}\text{O}(p,2n2pd)^{11}\text{C}$	-51,96	55,23	
$^{16}\text{O}(p,3n3p)^{11}\text{C}$	-54,18	57,59	
$^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$	-5,22	5,54	3,80
$^{16}\text{O}(p,pt)^{13}\text{N}$	-25,03	26,61	
$^{16}\text{O}(p,n^3\text{He})^{13}\text{N}$	-25,8	27,42	
$^{16}\text{O}(p,2p)^{13}\text{N}$	-29,07	30,90	
$^{16}\text{O}(p,npd)^{13}\text{N}$	-31,29	33,26	
$^{16}\text{O}(p,2n2p)^{13}\text{N}$	-33,51	35,62	

Die Q-Werte entstammen dem Programm Q-Tools des Los Alamos National Laboratory [76].

5.1.1 Targetelement Kohlenstoff

Die $^{nat}\text{C}(p,x)^{11}\text{C}$ -Anregungsfunktion (Abb. 37) ist von der Schwelle bis zu einer Protonenenergie von 200 MeV von verschiedenen Autoren [77-81] sehr gut beschrieben worden. Deshalb konnte der Vergleich der in dieser Arbeit ermittelten Daten mit den Literaturdaten dieser Reaktion als Kontrolle für die angewendete

Methode benutzt werden. Das Maximum (~ 105 mb) liegt bei etwa 38 MeV. Im ganzen Energiebereich tragen die Reaktionen $^{12}\text{C}(p,d)^{11}\text{C}$ und $^{12}\text{C}(p,pn)^{11}\text{C}$ bei. Wegen der geringen Bindungsenergie im Deuterium sind die Q-Werte für die ^2H -Emission (-16,5 MeV) und die pn-Emission (-18,7 MeV) sehr ähnlich, so dass man in der Anregungsfunktion keinen scharfen Übergang zwischen der (p,d)- und (p,pn)-Reaktion erkennt. Die Kernmodellrechnung beschreibt den Kurvenverlauf der Reaktion gut. Das Maximum der theoretischen Kurve liegt ca. 14 % tiefer als das Maximum der Eye-guide. Vergleicht man diese Diskrepanz mit den absoluten Fehlern der bestimmten Wirkungsquerschnitte (~ 20 %), ist die Übereinstimmung zufriedenstellend. Bei höheren Energien liegt die theoretische Kurve etwa um den Faktor 2 unterhalb der experimentellen Kurve. Da es sich bei Kohlenstoff um ein sehr leichtes Element handelt, ist die theoretische Beschreibung besonders schwierig wegen der großen Struktureffekte.

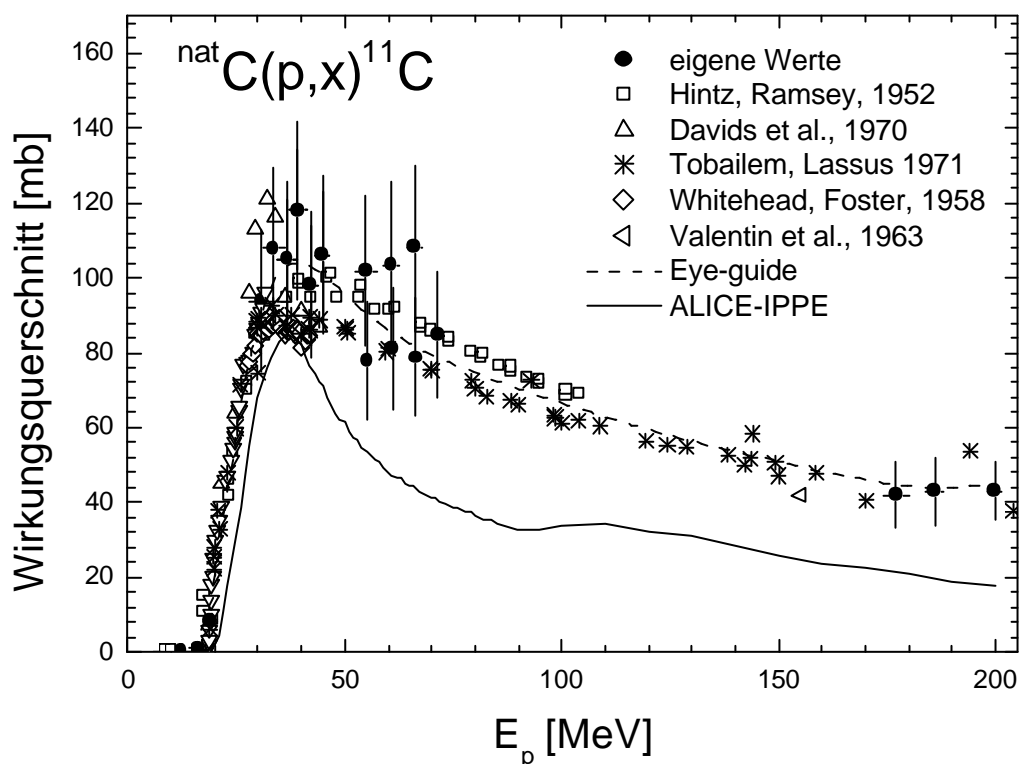


Abb. 37 Anregungsfunktion der $^{nat}\text{C}(p,x)^{11}\text{C}$ -Reaktion.

5.1.2 Targetelement Stickstoff

Die Abb. 38 zeigt die ${}^{\text{nat}}\text{N}(p,x){}^{11}\text{C}$ -Reaktion gemeinsam mit einer von der IAEA empfohlenen Kurve [82], die auf der Auswertung von 8 detaillierten Anregungsfunktionen basiert. Weiterhin sind die experimentellen Werte von Kovács et al. [83] und Fassbender et al. [84], sowie die mit ALICE-IPPE bestimmte theoretische Kurve in dieser Abbildung aufgeführt. Die in dieser Arbeit ermittelten Wirkungsquerschnitte setzten die im Niederenergiebereich sehr gut bekannte Anregungsfunktion fort. Während der Niederenergiebereich sehr gut untersucht wurde, sind oberhalb 25 MeV kaum Ergebnisse publiziert worden. Aus der Anregungsfunktion ist zu erkennen, dass bis ca. 25 MeV bevorzugt die (p,α) -Reaktion stattfindet. Bei höheren Energien öffnen sich weitere Reaktionskanäle, die mit steigender Energie in zunehmender Konkurrenz stehen. Aus dem Vergleich von Theorie und Experimenten wird deutlich, dass sowohl die Verdampfung von Komplexeilchen (α -Teilchen) im Niederenergiebereich sowie die Vielteilchenemission im höheren Energiebereich von der Theorie gut beschrieben wird. Allerdings wird der Übergang von der PE-Verdampfung von Komplexeilchen zum multiplen PE-Zerfall (Minimum der theoretischen Kurve bei ca. 40 MeV) von der Theorie nicht korrekt modelliert, d.h. zwischen 30 und 50 MeV finden mehrere Kernreaktionen nebeneinander statt.

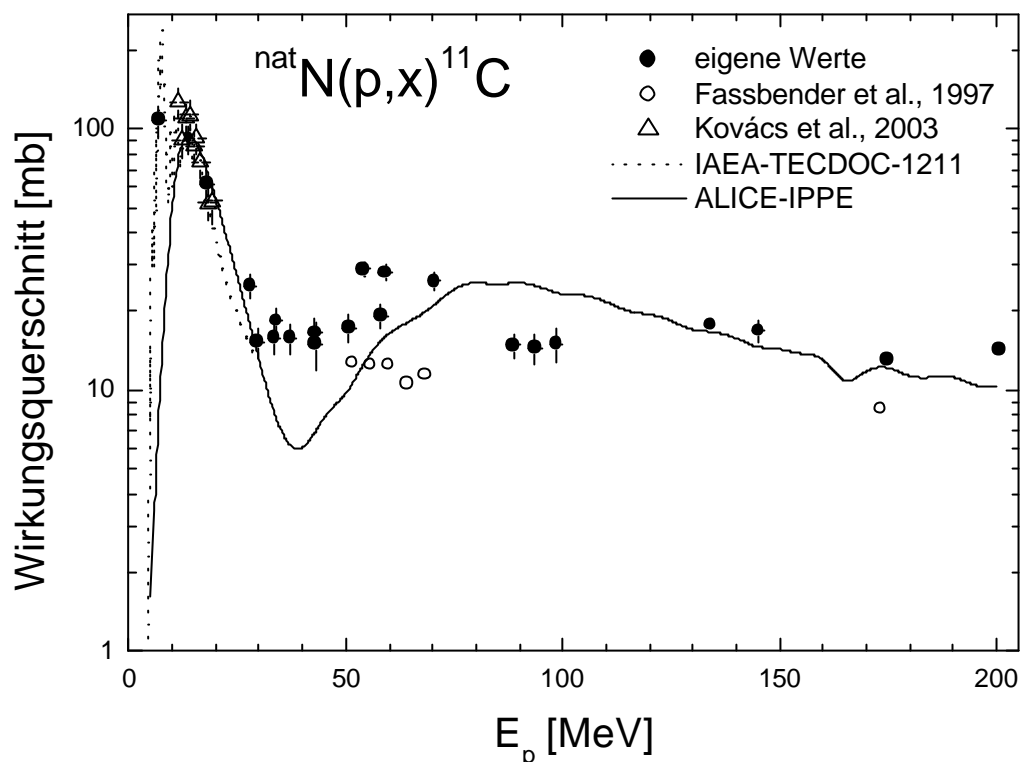


Abb. 38 Anregungsfunktion der ${}^{\text{nat}}\text{N}(p,x){}^{11}\text{C}$ -Reaktion.

In Abb. 39 ist die Bildung von N^{13} durch die protoneninduzierten Reaktionen an natürlichem Stickstoff dargestellt. Im Niederenergiebereich ist die ${}^{14}\text{N}(p,d){}^{13}\text{N}$ -Reaktion begünstigt. Mit steigender Energie gewinnt der (p,pn) -Prozess an Bedeutung. Der Beitrag der ${}^{15}\text{N}(p,t){}^{13}\text{N}$ Reaktion ist vernachlässigbar wegen der geringen Isotopenhäufigkeit von N-15. Auch hier liegen die Q-Werte für die (p,d) - und (p,pn) -Reaktionen nahe beieinander, wodurch die beiden Reaktionen in der Anregungsfunktion nicht zu unterscheiden sind. Die in dieser Arbeit ermittelten Wirkungsquerschnitte liegen unterhalb der Werte von Valentin [81, 85], führen aber den Trend der Sajjad- und Kovács-Werte [83, 86] fort. Die berechnete Kurve stimmt bis 30 MeV gut mit den experimentellen Wirkungsquerschnitten überein, liegt aber oberhalb dieser Energie über den in dieser Arbeit ermittelten Werten und deutlich unterhalb der Valentinwerte.

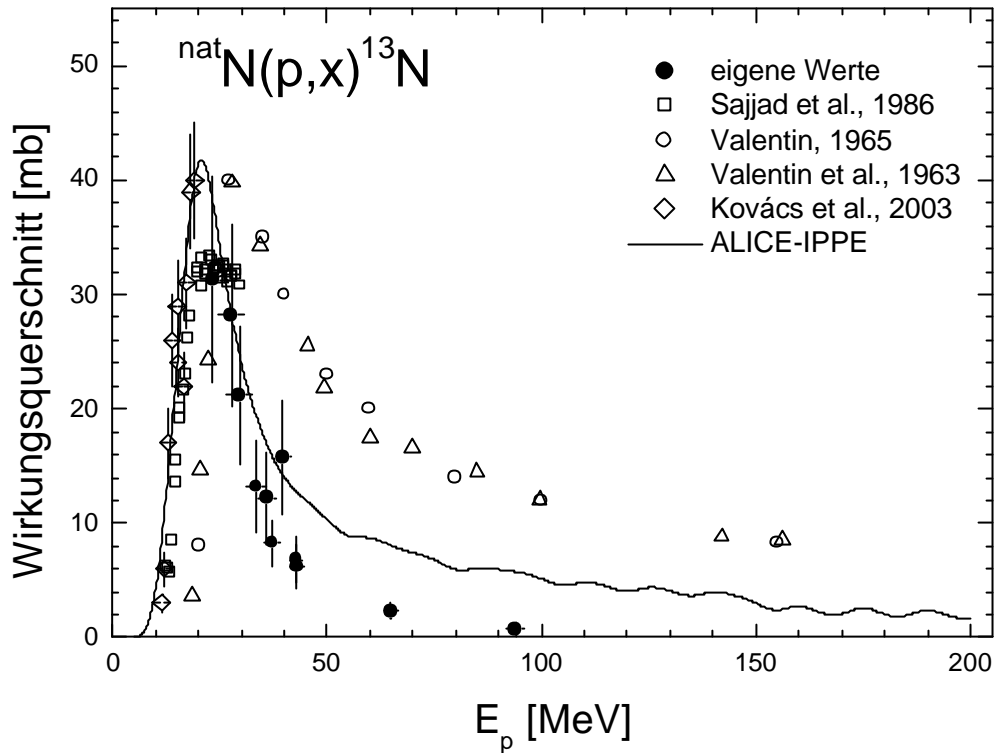


Abb. 39 Anregungsfunktion der $^{nat}\text{N}(p,x)^{13}\text{N}$ -Reaktion.

5.1.1 Targetelement Sauerstoff

Abb. 40 zeigt eine exzellente Übereinstimmung zwischen Theorie und Experimenten. Für die $^{nat}\text{O}(p,x)^{11}\text{C}$ -Reaktion existieren 5 Datensätze in der Literatur [81, 85, 87-89]. Des weiteren liegt eine gute Übereinstimmung zwischen den Literaturwerten und den hier ermittelten Werten vor. Da ^{11}C über die $^{16}\text{O}(p,\alpha d)^{11}\text{C}$, $^{16}\text{O}(p,\alpha pn)^{11}\text{C}$ und die $^{16}\text{O}(3p3n)^{11}\text{C}$ Reaktionen gebildet wird beschreibt die normierte Modellrechnung die PE-Verdampfung von Komplexeilchen und den multiplen PE-Zerfall sehr gut. Der Normierung liegt das Fermigas-Modell und das geometrieabhängige Hybridmodell zugrunde.

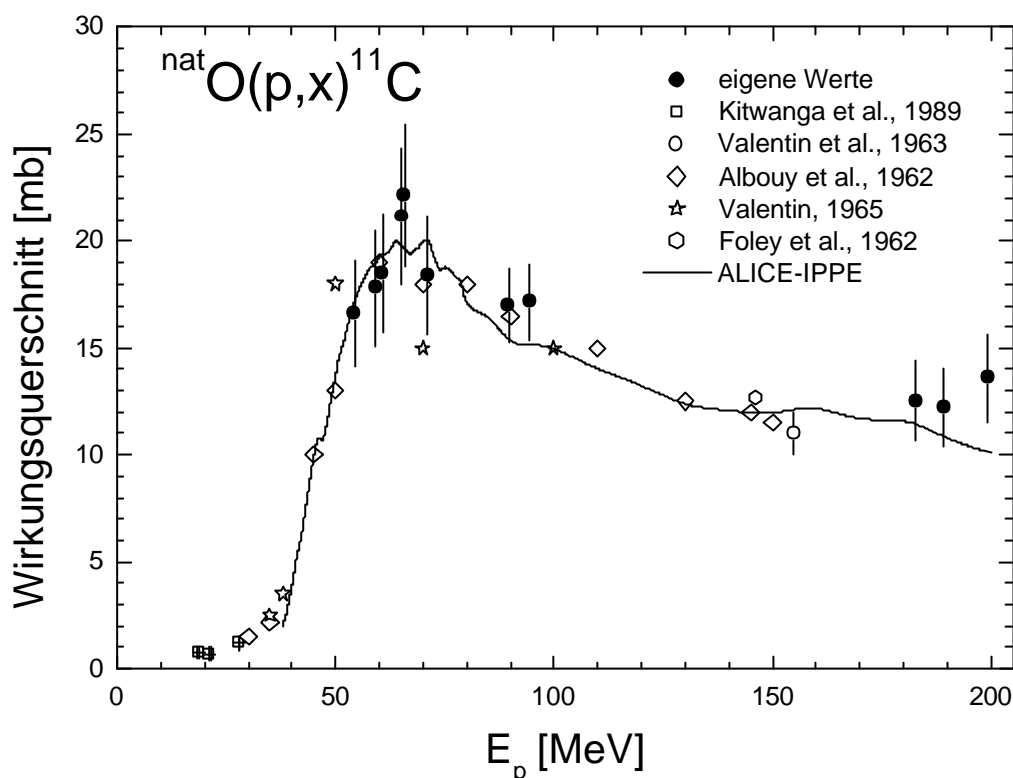


Abb. 40 Anregungsfunktion der $^{nat}\text{O}(p,x)^{11}\text{C}$ -Reaktion.

In Abb. 41 ist die $^{nat}\text{O}(p,x)^{13}\text{N}$ Reaktion dargestellt. Im Energiebereich bis 20 MeV beobachtet man viele Resonanzen. Es dominiert die $^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$ Reaktion, für die viele Literaturwerte existieren [1, 86-88, 90, 91]. Der Niederenergiebereich ist vergrößert dargestellt und zeigt die Literaturwerte und die von der IAEA empfohlene Kurve [82]. Die in dieser Arbeit ermittelten Daten decken den Energiebereich von 50 bis 200 MeV ab und sind in guter Übereinstimmung mit den Werten von Albouy [88]. Im höheren Energiebereich konkurriert der (p,α) -Prozess mit der multiplen Teilchenemission. Der Beitrag von ^{13}N aus der protoneninduzierten Reaktion an ^{17}O und ^{18}O ist wegen der sehr niedrigen Isotopenhäufigkeit dieser beiden Nuklide in natürlichem Sauerstoff zu vernachlässigen. Die experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte stimmen gut mit der theoretischen Kurve überein, außer in der Energieregion von 65-85 MeV, wo die theoretische Kurve um den Faktor 2 höher ist.

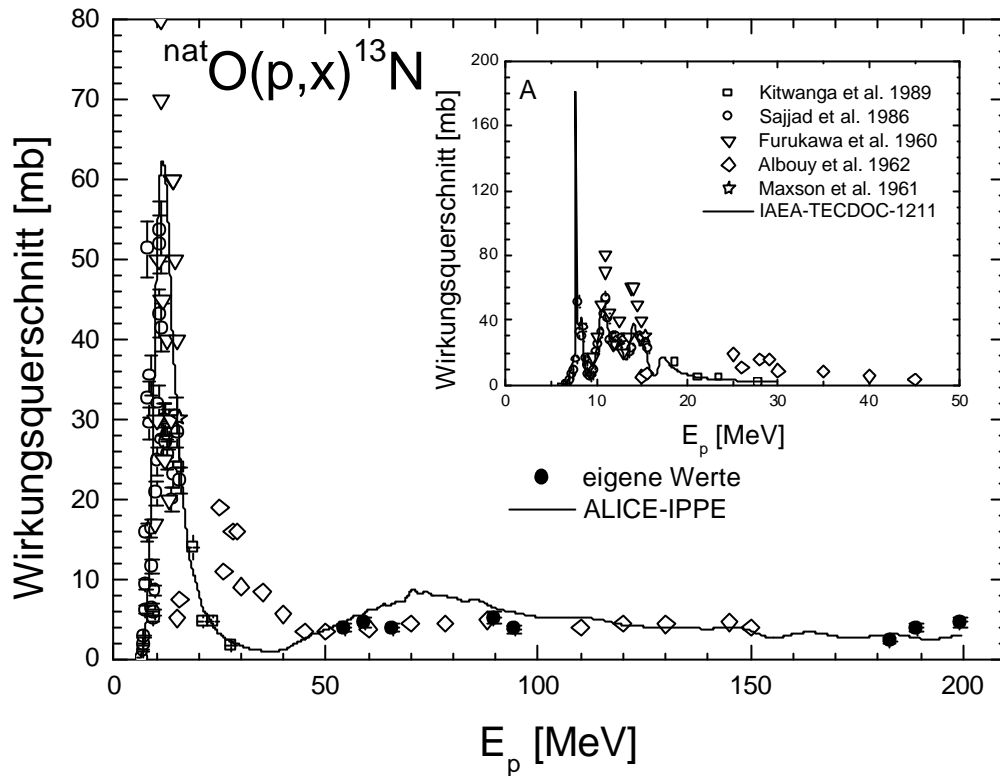


Abb. 41 Anregungsfunktion der $^{nat}\text{O}(p,x)^{13}\text{N}$ -Reaktion.

5.2 Aktivierungsprodukte aus den Kollimatormaterialien

In Tabelle 13 sind die Wirkungsquerschnitte für die Bildung einiger Aktivierungsprodukte an den Kollimatormaterialien Titan und Blei wiedergegeben. Die experimentellen Unsicherheiten lagen zwischen 12 und 15 %. Der Hauptbeitrag stammt hierbei aus der Flussbestimmung. Alle Daten wurden zum ersten Mal gemessen.

Tabelle 13 Wirkungsquerschnitte zur Bildung der weiche Strahlung emittierende Nuklide ^{45}Ca , ^{49}V und ^{204}Tl

E [MeV]	$\sigma (^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x)^{45}\text{Ca})$ [mb]	$\sigma (^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x)^{49}\text{V})$ [mb]	$\sigma (^{\text{nat}}\text{Pb}(p,x)^{204}\text{Tl})$ [mb]
33,2 ± 2,5	0,7 ± 0,1	8,6 ± 1,3	
36,7 ± 2,5	2,0 ± 0,2	7,2 ± 1,1	
42,0 ± 1,5			1,3 ± 0,2
42,5 ± 1,5			2,6 ± 0,4
43,7 ± 1,5		9,0 ± 1,3	
44,3 ± 1,0	1,8 ± 0,2	8,1 ± 1,2	
45,1 ± 1,0			0,8 ± 0,1
46,8 ± 2,5	2,9 ± 0,3	7,2 ± 1,1	
48,2 ± 2,5			1,4 ± 0,2
49,2 ± 2,5			2,3 ± 0,3
49,5 ± 2,5	2,7 ± 0,3	5,1 ± 0,8	
50,2 ± 2,5	5,4 ± 0,6		
52,1 ± 2,5			0,8 ± 0,1
53,4 ± 2,5	3,1 ± 0,4		
53,5 ± 2,5			2,2 ± 0,3
53,8 ± 2,5	2,6 ± 0,3		
54,5 ± 2,5	3,3 ± 0,4		
55,1 ± 2,5	4,4 ± 0,5		
55,9 ± 2,5	3,4 ± 0,4	1,8 ± 0,3	
57,3 ± 2,5			1,3 ± 0,2
58,6 ± 2,0	4,7 ± 0,6		
59,0 ± 2,0			1,9 ± 0,3
60,8 ± 2,0	3,9 ± 0,5	1,8 ± 0,3	
61,7 ± 2,0			1,3 ± 0,2
61,8 ± 2,0	3,0 ± 0,4		
62,0 ± 2,0			2,0 ± 0,3
63,2 ± 1,5	4,5 ± 0,5	1,7 ± 0,3	
64,3 ± 1,5			2,0 ± 0,3
65,6 ± 1,0	5,7 ± 0,7		
85,8 ± 2,5			4,4 ± 0,7
86,8 ± 2,5	5,8 ± 0,7	4,1 ± 0,6	
87,7 ± 2,5			7,8 ± 1,2
88,7 ± 2,0	5,6 ± 0,7	2,3 ± 0,3	
89,7 ± 2,0			9,2 ± 1,4
90,7 ± 2,0	6,9 ± 0,8		
96,1 ± 1,5	6,1 ± 0,7		
97,9 ± 1,5	6,6 ± 0,8		
98,2 ± 1,0		1,1 ± 0,2	
99,7 ± 1,0	5,0 ± 0,6	1,3 ± 0,2	
186,7 ± 2,0	4,0 ± 0,5		
186,9 ± 2,0		0,6 ± 0,1	
189,2 ± 2,0		0,6 ± 0,1	
191,8 ± 2,0	3,7 ± 0,4	0,6 ± 0,1	
194,3 ± 1,5	4,3 ± 0,5	0,6 ± 0,1	
196,8 ± 1,5	4,3 ± 0,5		
198,2 ± 1,0	4,1 ± 0,5		
199,3 ± 1,0	3,7 ± 0,4	0,5 ± 0,1	
201,8 ± 1,0		0,4 ± 0,1	

5.2.1 Targetelement Titan

5.2.1.1 Die $^{nat}\text{Ti}(p,x)^{45}\text{Ca}$ -Reaktion

Die ^{45}Ca -Aktivität wurde sowohl durch Flüssigszintillationszählung (LSC) als auch durch β -Zählung im Proportionalzähler ermittelt. Aufgrund der Geometrie beträgt die Ansprechwahrscheinlichkeit des Proportionalzählers nur maximal 50 %, wohingegen sie im LSC bis zu 100 % betragen kann. Daher sind schwache Probe besser per Flüssigszintillationszählung zu messen. Ein Vergleich der mit beiden Messtechniken bestimmten ^{45}Ca -Aktivitäten in Abb. 42 zeigt eine gute Übereinstimmung. Bei höheren Energien liegen die Messwerte des Durchflussproportionalzählers über den Werten des LSC, innerhalb der Fehlergrenzen sind die Messwerte aber kompatibel.

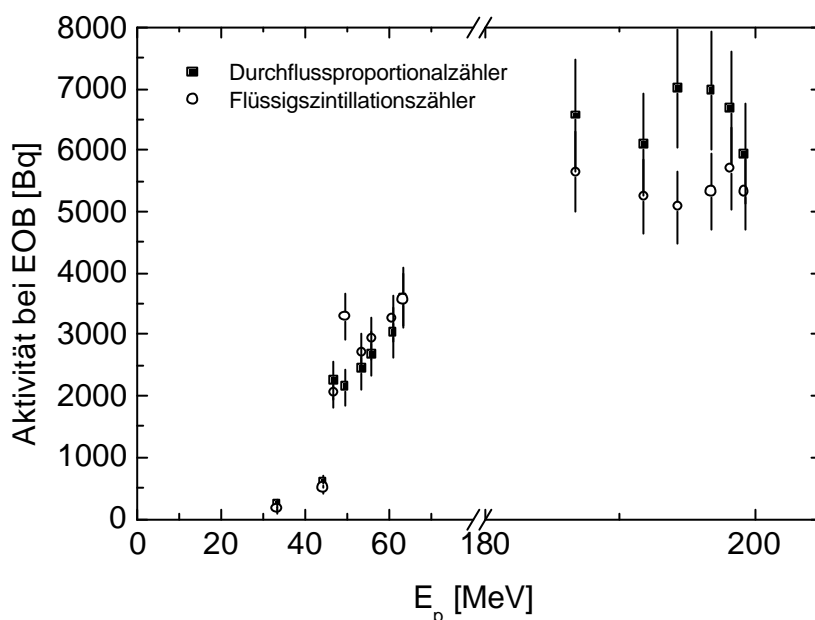


Abb. 42 Vergleich der Aktivitätsbestimmung durch Proportionalzähler und LSC.

In Abb. 43 ist die Anregungsfunktion der $^{nat}\text{Ti}(p,x)^{45}\text{Ca}$ -Reaktion im Energiebereich bis 200 MeV dargestellt und mit der Kernmodellrechnung verglichen. Da natürliches Titan zu 74 % aus Ti-48 besteht, fällt hier die protoneninduzierte Reaktion an Ti-48 am stärksten ins Gewicht. Energetisch betrachtet ist die $(p,p+^3\text{He})$ -Kernreaktion am günstigsten. Bei höheren Energien finden in steigendem Maße Kernreaktionen statt, bei denen infolge der hohen Anregungsenergie mehrere Nukleonen emittiert werden. Bedingt durch die hohe Schwellenenergie von mehr als 20 MeV und die Emission von geladenen Teilchen liegt das Maximum der Anregungsfunktion bei etwa 80 MeV. Die Kernmodellrechnung beschreibt den Trend der Reaktion gut. Da im

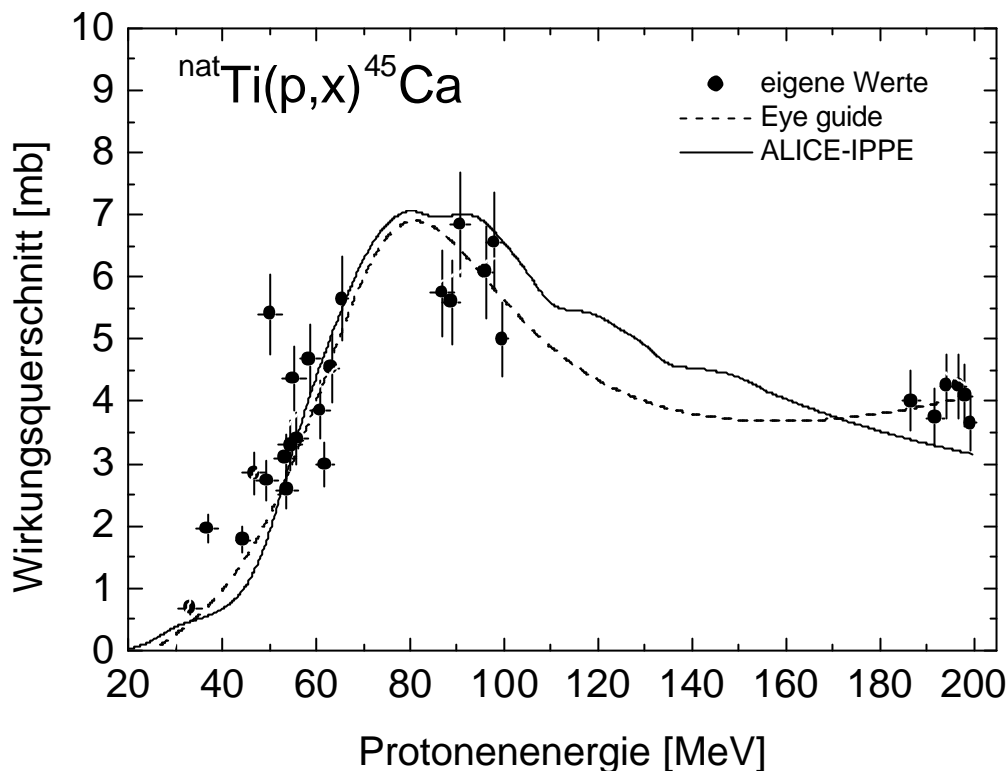


Abb. 43 Anregungsfunktion der ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x){}^{45}\text{Ca}$ -Reaktion.

Energiebereich zwischen 100 und 180 MeV keine Messwerte vorhanden sind, ist es schwer abzuschätzen ob der Verlauf der theoretischen Kurve oder die hier angepasste Kurve besser der Realität entspricht. Beide Kurven liegen aber dicht beieinander.

5.2.1.2 Die ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x){}^{49}\text{V}$ Reaktion

Vanadium-49 wird aus natürlichem Titan über die (p,n)-Reaktion an Ti-49 (5,5 %) und die (p,2n)-Reaktion an Ti-50 (5,4 %) gebildet. Typisch für Reaktionen, bei denen wenige Neutronen emittiert werden liegt das Maximum im Niederenergiebereich (Abb. 44). Auch bei dieser Reaktion wird die Neutronenemission durch die Kernmodellrechnung gut beschrieben.

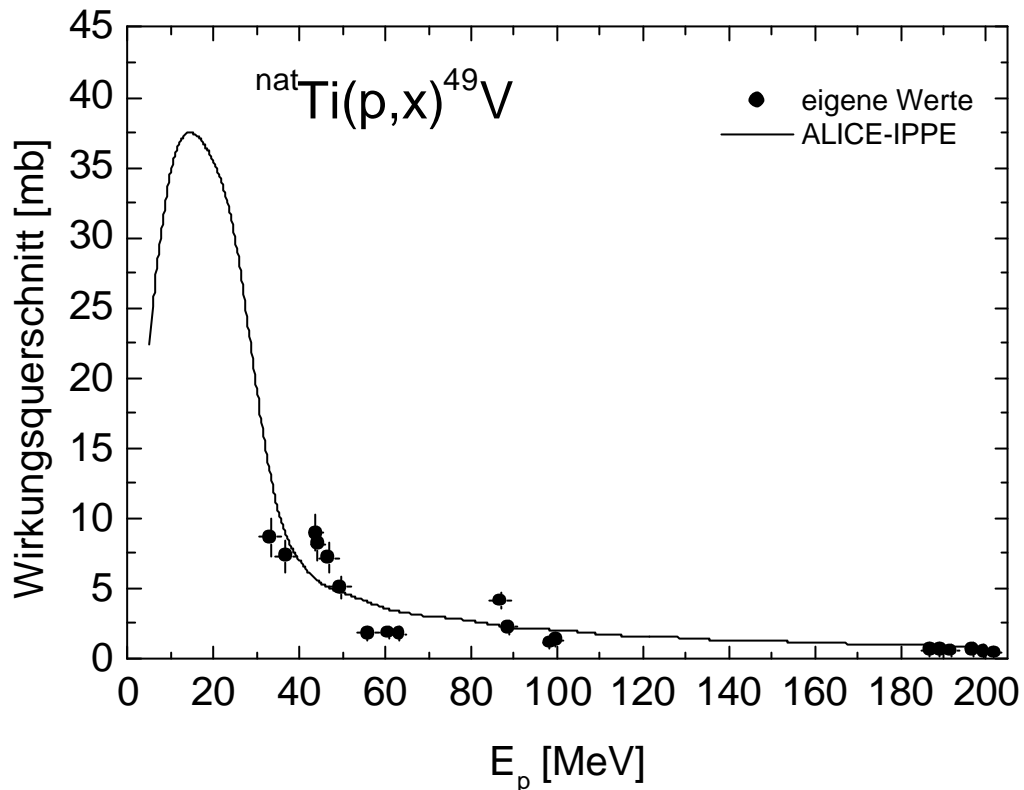


Abb. 44 Anregungsfunktion der ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x){}^{49}\text{V}$ -Reaktion.

5.2.2 Targetelement Blei

In Abb. 45 ist die Anregungsfunktion der protoneninduzierten Reaktion an natürlichem Blei, die zur Bildung von TI-204 führt, dargestellt. Aus energetischer Sicht sind die (p,α) -Reaktion an ${}^{207}\text{Pb}$ (22,1 %), die $(p,n\alpha)$ -Reaktion an ${}^{208}\text{Pb}$ (52,4 %) und die $(p,{}^3\text{He})$ -Reaktion an ${}^{206}\text{Pb}$ (24,1 %) am günstigsten. Die Darstellung der Reaktion verdeutlicht die Grenzen der theoretischen Modellierung. Die Reproduktion der experimentellen Ergebnisse, welche durch die Emission von Komplexeilchen dominiert wird, ist mit den vorliegenden Ansätzen ungenügend.

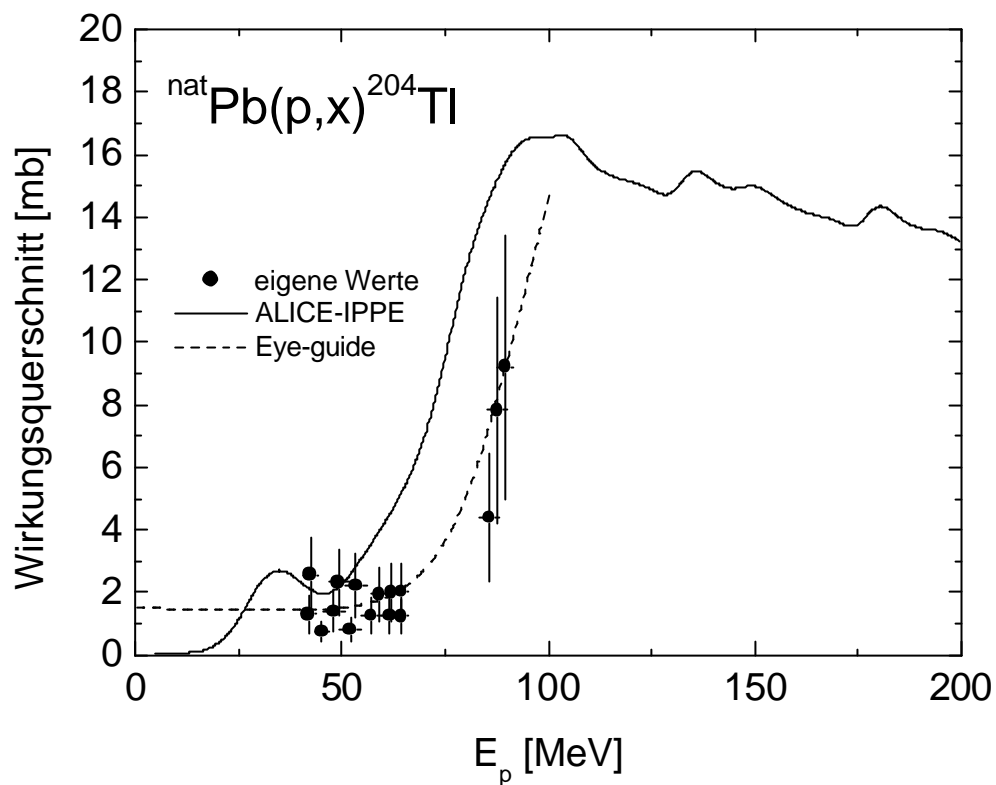


Abb. 45 Anregungsfunktion der $^{nat}\text{Pb}(p,x)^{204}\text{Tl}$ -Reaktion.

6 Aktivierungs- und Dosisabschätzung

6.1 Gewebeaktivierung

6.1.1 Energiedegradation

Menschliches Gewebe besteht hauptsächlich aus den Elementen H, C, N und O. Daneben kommen noch Na, Mg, P, S, Cl, K, Ca und Fe vor. 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. Tabelle 14 gibt die mittlere Zusammensetzung und Dichten verschiedener Körpergewebe wieder [16]. Grundlage für die Aktivitätsberechnung ist die Gleichung 11 (Integrale Ausbeute). Das Targetvolumen wurde als „dickes Target“ betrachtet, in welchem ein Protonenstrahl der Anfangsenergie $E = 200 \text{ MeV}$ entsprechend dem Bethe-Bloch-Formalismus schrittweise seine Energie verliert. Es wurde vereinfachend angenommen, dass sich Dichte und Elementverteilung während der Bestrahlung nicht ändern.

Tabelle 14 Elementzusammensetzung in Massenprozent und Dichten verschiedener Körpergewebe [16]

Gewebe	Element [%]											Dichte [g/cm ³]	
	H	C	N	O	Na	Mg	P	S	Cl	K	Ca		Fe
Kortikale Knochen	4,72	14,43	4,20	44,61		0,22	10,50	0,32			20,99	0,01	1,85
Muskelgewebe	10,06	10,78	2,77	75,48	0,08	0,02	0,20	0,24	0,08	0,3			1,04
Fettgewebe	11,95	63,72	0,80	23,23	0,05		0,02	0,07	0,12	0,03			0,92

Aus den mittleren Gewebedichten und den Flächenmassen wurde der Energieverlust in Abhängigkeit von der Strahleindringtiefe ermittelt (Abb. 46).

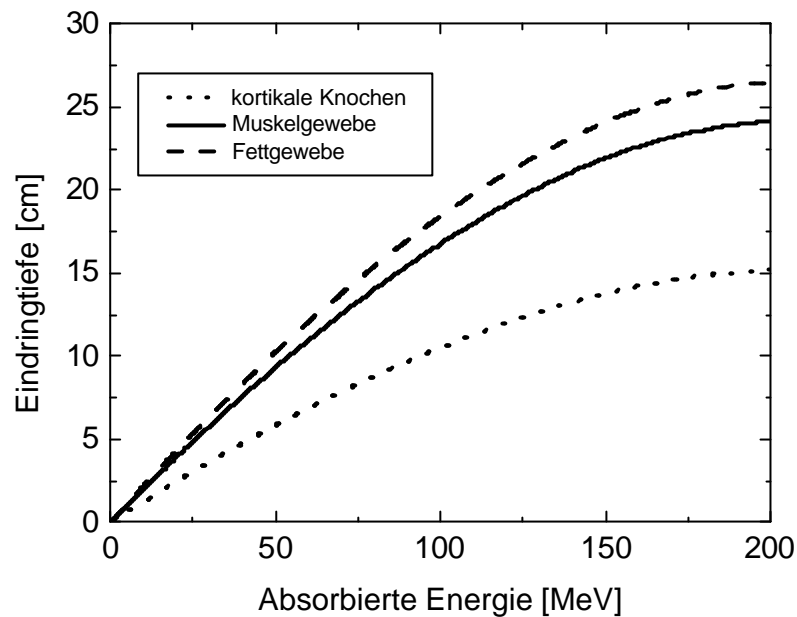


Abb. 46 Berechneter Verlauf der Abhängigkeit der Energie eines Protonenstrahls in Muskel- und Fettgewebe sowie im kortikalen Knochen von der Eindringtiefe.

Die Reichweite beträgt bei einer Anfangsenergie von 200 MeV im Muskelgewebe etwa 24 cm, im Fettgewebe ca. 27 cm und im kortikalen Knochen ungefähr 15 cm. Die jeweilige energiedegradierende Gewebe-Flächendichte wurde iterativ für Knochen, Muskel- und Fettgewebe in 1 MeV-Schritten berechnet. Der Energieverlust von 200 MeV Protonen in verschiedenen Geweben zeigt in Abb. 47 zu Beginn eine langsame Zunahme, dann einen steilen Anstieg und Abfall. Diese Funktionen zeigen einen ähnlichen Verlauf wie die Tiefe-Dosis Kurve von 200 MeV Protonen in Wasser, die bei ca. 25 cm ein scharfes Maximum (Bragg-Peak) aufzeigt.

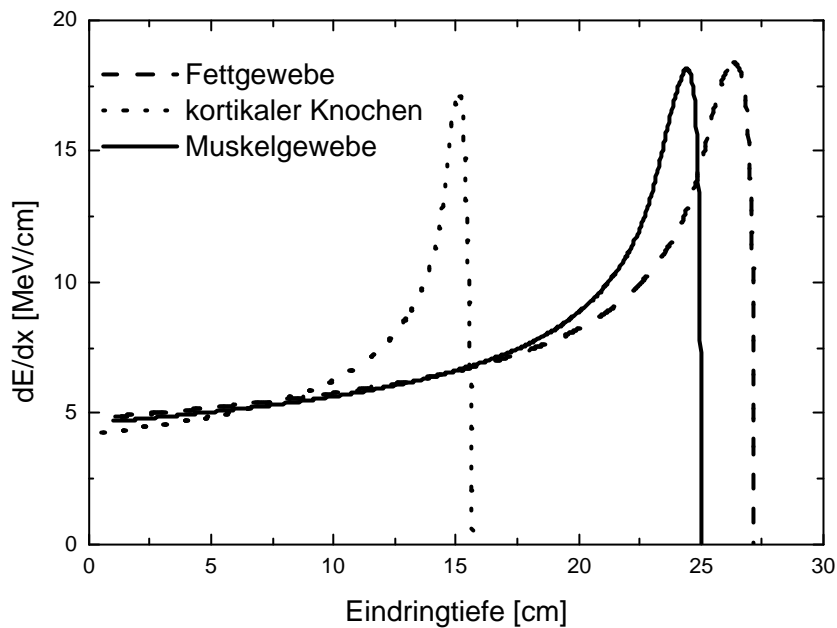


Abb. 47 Berechneter Verlauf der Abhängigkeit des Energieverlustes eines Protonenstrahles der Eintrittsenergie $E_p = 200$ MeV in Muskel- und Fettgewebe und kortikale Knochen von der Strahl-Eindringtiefe.

6.1.2 Bildung kurzlebiger Positronenemitter

Durch protoneninduzierte Kernreaktionen an C, N und O im Gewebe kommt es zur Bildung der Positronenstrahler ^{11}C ($T_{1/2} = 20,38$ min) und ^{13}N ($T_{1/2} = 9,96$ min). Aus dem Verlauf der Strahlenergie, der differentiellen Flächenbewegungen (stopping power) und den entsprechenden Wirkungsquerschnitten lässt sich die differentielle Ausbeute errechnen. Abb. 48 und Abb. 49 zeigen die differentiellen Ausbeuten an ^{11}C und ^{13}N als Funktion der Eindringtiefe. Zur Normierung der differentiellen und integralen Ausbeute wurden die typische Therapiebedingungen vom Loma Linda University Medical Center aus Kalifornien, ein Strahlstrom von 2 nA und eine Bestrahlungsdauer von 2 min [92], gewählt. In den Abbildungen Abb. 48 und Abb. 49 sind die differentiellen Ausbeuten von C-11 und N-13 in Abhängigkeit von der Strahleindringtiefe dargestellt.

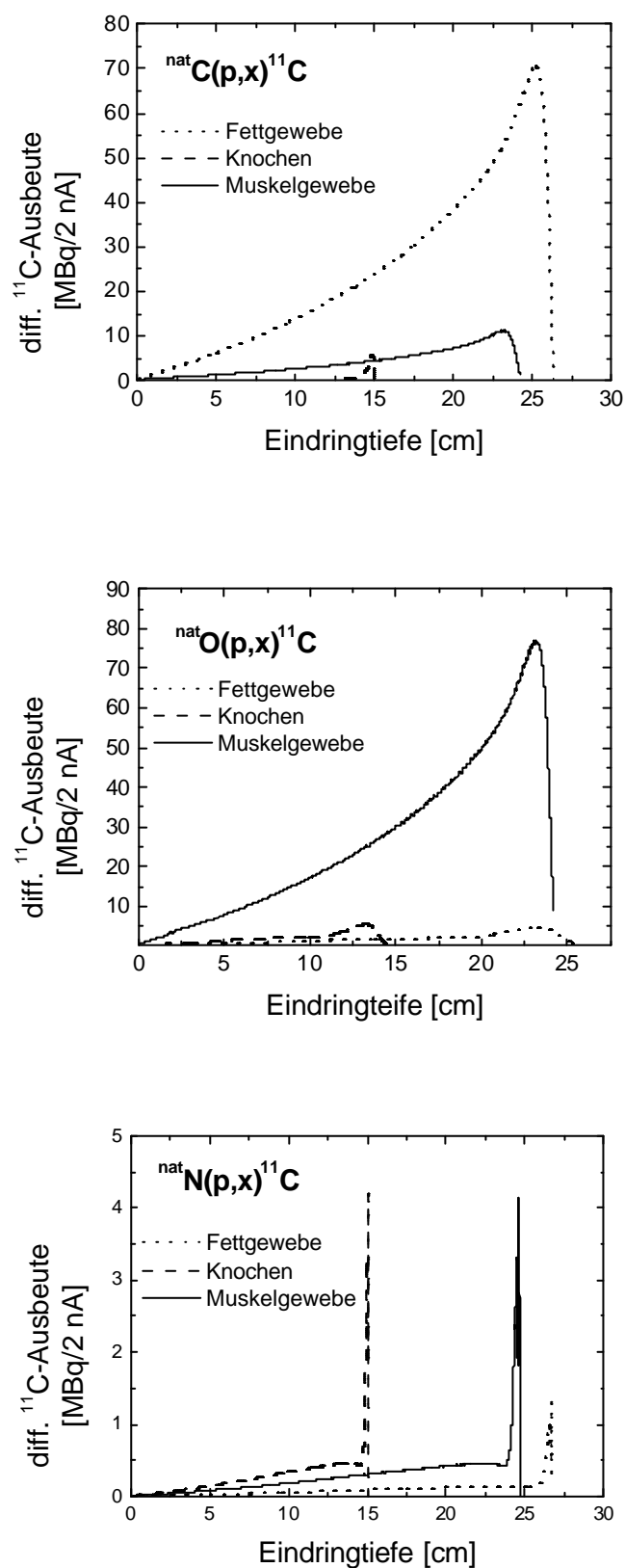


Abb. 48 Differentielle ^{11}C -Ausbeute in Abhängigkeit von der Strahleindringtiefe bei einer Bestrahlungsdauer von 2 min und einem Strahlstrom von 2 nA.

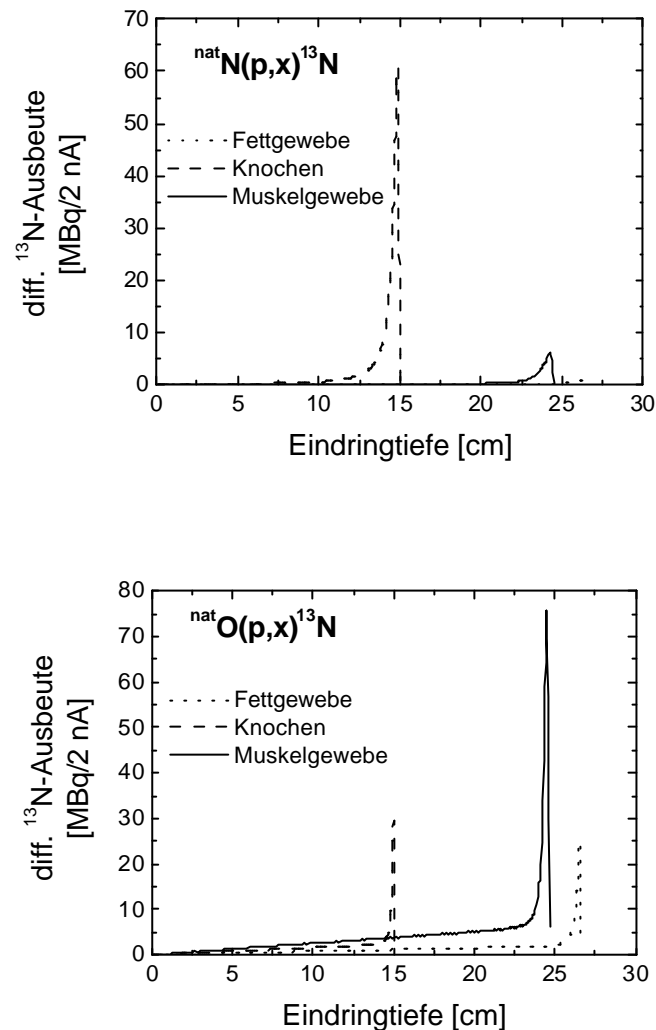


Abb. 49 Differentielle ¹³N-Ausbeuten in Abhängigkeit von der Strahleindringtiefe bei einer Bestrahlungsdauer von 2 min.

Tabelle 15 enthält die integralen ¹¹C- und ¹³N-Ausbeuten, die bei einer zweiminütigen Bestrahlung mit 200 MeV Protonen in den Bereichen der Bragg-Peaks entstehen. Die Aktivitätsausbeute wurde auf einen Strahlstrom von 2 nA normiert. Das entspricht im Bragg-Peak Bereich einer ¹¹C-Aktivität von 2909 MBq im Fettgewebe, 725 MBq im Muskelgewebe und 415 MBq im Knochen. Des weiteren werden 208 MBq ¹³N im Fettgewebe, 685 MBq im Muskelgewebe und 346 MBq im Knochen gebildet. ¹⁸F konnte aufgrund der geringen Isotopenhäufigkeit von ¹⁸O in natürlichem Sauerstoff nicht experimentell bestimmt werden. Deshalb wurde die ¹⁸O(p,n)¹⁸F-Anregungsfunktion, die bis 30 MeV sehr gut bekannt ist [82, 93] bis 200 MeV verlängert. Dabei wurde die Annahme gemacht, das keine weitere Resonanz

auftaucht und die Funktion von 30-200 MeV parallel zur x-Achse verläuft. Unter dieser Annahme würden bei der Bestrahlung von Muskelgewebe 1 MBq ^{18}F entstehen.

Tabelle 15 Integrale Aktivitäten Y_i in verschiedenen Geweben im Bereich der Bragg-Peaks bei einer zweiminütigen Bestrahlung mit 200 MeV Protonen und einem Strahlstrom von 2 nA in [MBq].

Kernreaktion	$Y_i (^{11}\text{C})$ [MBq]			$Y_i (^{13}\text{N})$ [MBq]		
	Muskel	Fett	Knochen	Muskel	Fett	Knochen
$^{12}\text{C}(p,x)$	359	2731	192			
$^{14}\text{N}(p,x)$	39	12	39	92	10	105
$^{16}\text{O}(p,x)$	327	166	184	593	198	241
gesamt	725	2909	415	685	208	346

Die integralen Ausbeuten sind demnach abhängig von dem Gewebe das bestrahlt wird. Von der internationalen Kommission für Radiologische Einheiten und Messungen (ICRU) wurde ein Phantom zur Nachbildung des Menschen hinsichtlich der Energieaufnahme bei ionisierenden Strahlungen eingeführt. Dieses besteht aus einer gewebeähnlichen Kugel von 30 cm Durchmesser mit einer Dichte von 1 g/cm^3 und einer Massenzusammensetzung von 76,2 % O, 11,1 % C, 10,1 % H und 2,6 % N [94]. Für die weiteren Dosisberechnungen wurde deshalb die Elementzusammensetzung von Muskelgewebe zugrunde gelegt. Die erzeugten Aktivitäten an kurzlebigen Positronenemittern im Muskelgewebe entsprechen mit 725 MBq (19,6 mCi) ^{11}C und 685 MBq (18,5 mCi) ^{13}N etwa der bei einer PET-Untersuchung eingesetzten C-11 Aktivität. Bei der PET-Untersuchung verteilt sich jedoch die Aktivität auf den ganzen Körper. Dagegen bleibt die Aktivität bei der Protonentherapie auf den Bragg-Peak-Bereich begrenzt.

6.1.3 Protonendosimetrie

Protonen wirken direkt ionisierend und verlieren ihre Energie hauptsächlich durch elektromagnetische Wechselwirkungen mit Hüllenelektronen. Dabei verlieren sie sukzessiv ihre Energie. Dieser Energietransfer auf geladene Sekundärteilchen wird als Cema (Converted Energy per unit Mass) definiert [95].

$$C = \Phi \frac{S}{r}$$

Gl. 32

$\frac{S}{r}$: mass electronic stopping power für ein Medium ($\text{Jm}^2\text{kg}^{-1}$)

Φ : Fluenz (m^{-2})

Die Fluenz Φ ist der Quotient aus dN und da . Dabei ist dN die Zahl der Teilchen, die in eine Kugel mit der Querschnittsfläche da eindringen.

$$\Phi = \frac{dN}{da} \quad \text{Gl. 33}$$

Durch anschließende Wechselwirkungen dieser geladenen Sekundärteilchen mit dem Gewebe wird die Energiedosis auf das bestrahlte Gewebe übertragen. Da hochenergetische Protonen und sekundäre Elektronen ihre Energie sehr nahe am Punkt ihrer Entstehung übertragen, entspricht die absorbierte Dosis D weitgehend C_{ema} , so dass gilt [96]:

$$D \approx C = \Phi \frac{S}{r} \quad \text{Gl. 34}$$

Im Allgemeinen hängt das Maximum der absorbierten Dosis D für ein gegebenes Bestrahlungsfeld von dessen Größe und dem bestrahlten Material ab. Bei einer zweiminütigen Bestrahlung mit einem Strahlstrom von 2 nA erhält man im Mittelpunkt einer gewebeähnlichen Kugel ($\varnothing = 30$ cm) eine Dosis von 1,8 Gy ($\frac{S}{\rho} = 5,4 \frac{\text{MeV} \cdot \text{cm}^2}{\text{g}}$ [16] in Muskelgewebe bei einer Eindringtiefe von 15 cm). Dies entspricht etwa der Dosis einer Bestrahlungsfraction in der Therapie. Für die klinische Anwendung ist es aber nötig, dass eine relativ einheitliche Dosis an das bestrahlte Gewebe abgegeben wird. Deshalb ist es nötig, den Strahl auszubreiten, und zwar lateral und in der Tiefe. Man kann das durch Überlagerung von Bragg-Peaks verschiedener Intensitäten und Energien erreichen. Die Technik bezeichnet man als „Strahlmodulation“ und man stellt somit eine Region einer hohen einheitlichen Dosis her was man als „spread-out Bragg Peak“ (SOBP) bezeichnet.

6.1.4 Berechnung der Aktivität bei der Gewebeaktivierung

Da in dieser Arbeit unmodulierte Protonenstrahlen benutzt wurden, wurde die Dosisberechnung für eine engumgrenzten Hirntumor, der mit einem kleinen Bestrahlungsfeld bestrahlt werden kann, mit Hilfe der ermittelten Kerndaten bestimmt. Dazu wird ein Modell des menschlichen Schädels benötigt.

Im MIRD Pamphlet Nr. 5 [97] wird ein Phantom des Standardmenschen definiert: Das benutzte Phantom hat eine einfache geometrische Form und beschreibt die Körperform und -dimensionen. 22 innere Organe werden als Subregionen des Phantoms definiert. Jedes Organ wird in seiner Zusammensetzung und Dichte als homogen betrachtet. Das Ganzkörperphantom umfasst drei prinzipielle Sektionen: einen elliptischen Zylinder der Arme, Torso und Hüften repräsentiert, ein gestutzter, elliptischer Kegel, der beide Beine und Füße beschreibt und ein elliptischer Zylinder für Kopf und Hals. Unterschiedliche Zusammensetzungen und Dichten werden für das Skelett, die Lungen und den restlichen Körper benutzt. Diese drei Regionen bestehen hauptsächlich aus Wasserstoff Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff.

Der Schädel wird als ein Volumen zwischen zwei nicht konzentrischen Ellipsoiden definiert:

$$\left(\frac{x}{6}\right)^2 + \left(\frac{y}{9}\right)^2 + \left(\frac{z-86,5}{6,5}\right)^2 \geq 1 \quad \text{Gl. 35}$$

und

$$\left(\frac{x}{6,8}\right)^2 + \left(\frac{y}{9,8}\right)^2 + \left(\frac{z-85,5}{8,3}\right)^2 \leq 1 \quad \text{Gl. 36}$$

Es ergibt sich somit ein Volumen $V_{\text{Schädel}} = 846,6 \text{ cm}^3$ und die Schädelmasse beträgt $m_{\text{Schädel}} = 1258 \text{ g}$.

Das Gehirn wird durch einen Ellipsoiden mit der folgenden Gleichung beschrieben:

$$\left(\frac{x}{6}\right)^2 + \left(\frac{y}{9}\right)^2 + \left(\frac{z-86,5}{6,5}\right)^2 \leq 1 \quad \text{Gl. 37}$$

Das Volumen beträgt $V_{\text{Gehirn}} = 1470 \text{ cm}^3$ und das Gehirn wiegt 1451 g.

Das Hirn eines erwachsenen Menschen besteht aus 77,4 % Wasser, 1,71 % N, 10 % Proteinen, 0,13 % Na, 0,33 % K, 0,14 % Cl, 0,01 % Mg, 0,01 % Ca und 0,33 % P. Neben weiteren Spurenelementen enthält Hirngewebe noch weitere organische Substanzen wie z.B. freie Aminosäuren, Polyamine, Lipide, etc [98]. Da es schwierig ist aus diesen Daten die chemische Zusammensetzung zu ermitteln, der anorganische Anteil größenordnungsmäßig mit der Zusammensetzung von Muskelgewebe übereinstimmt und die energiedegradierenden Eigenschaften der

leichten Elemente C, O, und N in etwa gleich sind, wurde die chemische Zusammensetzung von Hirngewebe mit der von Muskelgewebe gleichgesetzt.

Die äußere Hautschicht ist ungefähr 70 µm dick und besteht aus abgestorbenen Zellen. Die absorbierte Dosis in dieser Haut wird ignoriert [97].

Das skeletale System beinhaltet das ganze Skelett, also Knochen und Knochenmark. Es wird die vereinfachende Annahme gemacht, das Knochengewebe homogen ist. In Tabelle 16 ist die Zusammensetzung des Knochengewebes wiedergegeben. Die Dichte dieses Gewebes beträgt 1,4862 g/cm³.

Tabelle 16 Elementzusammensetzung des Knochengewebes im Phantom (in Massenprozent)

Element	Element- zusammensetzung [%]
H	7,04
C	22,79
N	3,87
O	48,56
Na	0,32
Mg	0,11
P	6,94
S	0,17
Cl	0,14
K	0,15
Ca	9,91
Fe	8,0E-03
Zn	4,8E-03
Sr	3,2E-03
Pb	1,1E-03

Da Knochengewebe ca. 7 % P und 10 % Ca enthält, wurde die Aktivierung dieser Elemente abgeschätzt. Dazu wurden die protoneninduzierten Reaktionen an P und Ca, die zur Bildung von ^{22,24}Na führen, betrachtet. Zur Aktivitätsabschätzung wurden die von Fassbender et al. bestimmten Anregungsfunktionen [74] benutzt. Die Bildung der Natriumisotope aus P und Ca mit Mittelenergie-Protonen ist vernachlässigbar.

Aus den Gleichungen 32 und 33 ergeben sich als Dicken des Schädelknochens 0,8 und 1,8 cm. Bei einer Knochendicke von 0,8 cm und einer Primärenergie von 200 MeV würden in dem in Tabelle 16 beschriebenen Knochengewebe 5 MeV Protonen absorbiert. Ein Protonenstrahl der Energie 195 MeV hat eine Reichweite von über 20 cm im weichen Gewebe. Selbst bei einer Knochendicke von 1,8 cm (Energieabsorption = 12 MeV) hätte der ins weiche Gewebe eindringende Strahl eine Reichweite von ca. 20 cm. Eine Primärenergie von 150 MeV entspricht einer Anfangsenergie von 144 MeV (0,8 cm) bzw. 133 MeV (1,8 cm). Damit hätte der Protonenstrahl im Gewebe Reichweiten von 14,9 cm und 12,9 cm. In Anlehnung an die ICRU-Kugel wurde die Zusammensetzung des Hirngewebes aus oben beschriebenen Gründen als Muskelgewebe betrachtet und die integralen Ausbeuten für die verschiedenen Anfangsenergien, entsprechend der unterschiedlichen Dicke des Schädelknochens, berechnet. Als Strahlparameter wurden folgende Annahmen gemacht:

- Primärenergie $E_p = 150$ MeV
- Strahlstrom $I = 2$ nA
- Strahlzeit $t = 2$ min

Die integralen Ausbeuten der einzelnen Kernreaktionen sind in Tabelle 17 aufgelistet.

Tabelle 17 Integrale Ausbeuten Y_i protoneninduzierter Kernreaktionen an O, C und N im Muskelgewebe bei Protonenenergien von 144 und 133 MeV.

Kernreaktion	$E_p = 144$ MeV		$E_p = 133$ MeV	
	Y_i (^{11}C) [MBq]	Y_i (^{13}N) [MBq]	Y_i (^{11}C) [MBq]	Y_i (^{13}N) [MBq]
$^{\text{nat}}\text{O}(p,x)$	265	356	192	290
$^{\text{nat}}\text{C}(p,x)$	191		167	
$^{\text{nat}}\text{N}(p,x)$	20	55	17	45
Gesamt	476	411	376	335

Bei einer Protonenenergie von 144 MeV bilden sich im Gehirn 476 MBq C-11 und 411 MBq N-13. 133 MeV Protonen bilden 376 MBq C-11 und 335 MBq N-13 im Gehirn. Die Gesamtaktivität der beiden Positronenstrahler entspricht immer noch der Aktivität, die bei einer PET-Untersuchung mit Kohlenstoff-11 appliziert wird.

6.1.5 Dosisberechnung

Zur Abschätzung der Energiedosis, die durch die Strahlentherapie induzierten Aktivitäten den einzelnen Organen zugeführt wird, kann das MIRD-(Medical Internal Radiation Dose) Konzept dienen. Nach dem MIRD-Konzept wird zwischen einem Quell- und Zielorgan unterschieden. Im Quellorgan befindet sich die Aktivität, die eine Dosis an umliegende Organe und Gewebe abgibt. Für die durchschnittliche Dosis \bar{D} gilt:

$$\bar{D} = \tilde{A}nE\phi/m \quad \text{Gl. 38}$$

mit \tilde{A} = kumulierte Aktivität während eines bestimmten Zeitintervalls

n = Anzahl der emittierten Teilchen und Photonen pro Zerfall

E = durchschnittliche Energie der emittierten Teilchen und Photonen

ϕ = absorbiertes Anteil (beim radioaktiven Zerfall werden Teilchen und Photonen gleichmäßig in alle Richtungen verteilt und somit kann nur ein Bruchteil der Energie im Zielorgan absorbiert werden)

m = Masse des Targetorgans.

Mit $\Delta = nE$ und $\Phi = \phi/m$ lässt sich Gl. 35 umformen zu:

$$\bar{D} = \tilde{A}\Delta\Phi \quad \text{Gl. 39}$$

Das Produkt aus Δ und Φ bezeichnet man als S-Wert und somit ergibt sich:

$$\bar{D} = \tilde{A}S \quad \text{Gl. 40}$$

Es ist üblich, die Dosis als Dosis pro Einheit applizierter Aktivität auszudrücken. Dazu wird die Verweildauer τ definiert:

$$\tau = \tilde{A}/A_0 \quad \text{Gl. 41}$$

wobei A_0 die applizierte Aktivität ist. Daraus folgt:

$$\bar{D}/A_0 = \tau S \quad \text{Gl. 42}$$

Die Verweildauer ist abhängig von der physikalischen Halbwertszeit und der biologischen Halbwertszeit für physiologische Transportprozesse. Da die kumulierte Aktivität die Summe aller nuklearen Übergänge in einem Organ h in einem bestimmten Zeitintervall ist und die Summation aller nuklearen Übergänge während eines Zeitintervalls der Integration von $A_h(t)$ während dieses Zeitintervalls entspricht, kann man die kumulierte Aktivität in einem Organ h ausdrücken als

$$\tilde{A}_h = \int_0^{\infty} A_h(t) dt \quad \text{Gl. 43}$$

Die Aktivität zerfällt nach dem Zerfallsgesetz

$$A_h(t) = \sum_i A_i e^{-(\lambda_i + \lambda_{bi})t} \quad \text{Gl. 44}$$

mit λ = physikalischen Zerfallskonstanten

λ_{bi} = biologischen Zerfallskonstanten.

Durch Integration von Gleichung 44 ergibt sich:

$$\tilde{A}_h = \sum_i \frac{A_i}{(\lambda_i + \lambda_{bi})} = 1,443 \sum_i A_i (T_i)_{\text{eff}} \quad \text{Gl. 45}$$

und

$$(T_i)_{\text{eff}} = 0,693 / (\lambda_i + \lambda_{bi}) \quad \text{Gl. 46}$$

mit T_i = effektive Halbwertszeit.

Es wird angenommen, dass die biologische Halbwertszeit kurzlebiger β^+ -Strahler für physiologische Transportprozesse sehr viel größer ist als die physikalische. Dann hat die Dosis D den Wert

$$D = S \cdot A_0 \cdot \frac{T}{\ln 2} \quad \text{Gl. 47}$$

mit T = physikalischer Halbwertszeit

Wenn man jetzt berücksichtigt, dass verschiedene Strahlungsarten (positive und negative β -Teilchen, γ -Strahlen, Röntgenstrahlen, Konversionselektronen, Augerelektronen) vom Quellorgan emittiert werden, dann ergibt sich:

$$\bar{D} / A_0 = \sum_i t S \quad \text{Gl. 48}$$

Daraus folgt:

$$\Delta = \sum_i n_i E_i \quad \text{Gl. 49}$$

und

$$\phi_i = \frac{\text{von Quelle } r_h \text{ emittierte Energie } i \text{ und im Target } r_k \text{ absorbiertes Anteil}}{\text{Energie } i \text{ emittiert von Quelle } r_h}$$

Der absorbierte Anteil hängt zum einem von der Art und Energie der Strahlung ab und zum anderen von der Größe, Form und Zusammensetzung von Quelle und Target und dem Abstand zwischen Quell- und Zielorgan. Die Werte für ϕ_i liegen zwischen 0 und 1. Für nicht penetrierende (np) Strahlungen ist das Quellorgan sogleich Zielorgan. Betateilchen, Elektronen und Photonen mit Energie zwischen 10 und 20 keV bezeichnet man als nichtpenetrierend und ϕ_i entspricht 1. Für alle anderen Targetorgane ist ϕ_i dann 0 [99].

$$\phi_{np}(r_h \leftarrow r_h) = 1; \quad \text{Gl. 50}$$

$$\phi_{np}(r_k \leftarrow r_h) = 0, k \neq h \quad \text{Gl. 51}$$

mit r_h = Quellorgan

r_k = Zielorgan

Der Absorbierte Anteil im Zielorgan r_k vom Quellorgan r_h für penetrierende Strahlungen (p) ist $\phi_p(r_k \leftarrow r_h)$, und der spezifische absorbierte Anteil ergibt sich dann zu:

$$\Phi_p(r_k \leftarrow r_h) = \phi_p(r_k \leftarrow r_h) / m_k. \quad \text{Gl. 52}$$

Damit ergeben sich folgende S-Werte:

$$S(r_k \leftarrow r_h) = \sum_i \Delta_i \Phi_i(r_k \leftarrow r_h). \quad \text{Gl. 53}$$

Die Dosis im Zielorgan errechnet sich dann nach folgender Gleichung:

$$D(r_k \leftarrow r_h) = A_0 \cdot \tau \cdot S(r_k \leftarrow r_h) \quad \text{Gl. 54}$$

Tabelle 18 enthält die Zerfallsdaten für die hier betrachteten Nuklide im MIRD Format. In Tabelle 19 sind die absorbierten Anteile ϕ der Vernichtungsstrahlung in verschiedenen Organen/Geweben aufgelistet [100].

Tabelle 18 Zerfallsdaten im MIRD Format [40]

Nuklid	Strahlung	n_i [(Bq·s) ⁻¹]	E_i^* [MeV]	$n_i \times E_i$
N-13	β^+	$9,98 \cdot 10^{-1}$	$4,918 \cdot 10^{-1*}$	$4,91 \cdot 10^{-1}$
	γ	2,0	$5,11 \cdot 10^{-1}$	1,02
	K X-ray	$3,72 \cdot 10^{-6}$	$2,0 \cdot 10^{-4*}$	$7,44 \cdot 10^{-10}$
	Auger-K	$1,86 \cdot 10^{-3}$	$2,60 \cdot 10^{-4*}$	$4,83 \cdot 10^{-7}$
C-11	β^+	$9,98 \cdot 10^{-1}$	$3,856 \cdot 10^{-1*}$	$3,85 \cdot 10^{-1}$
	γ	2,0	$5,11 \cdot 10^{-1}$	1,02
	K X-ray	$2,22 \cdot 10^{-6}$	$1,0 \cdot 10^{-4*}$	$2,22 \cdot 10^{-10}$
	Auger-K	$2,22 \cdot 10^{-3}$	$1,70 \cdot 10^{-4*}$	$3,77 \cdot 10^{-7}$

* Mittlere Energie

Tabelle 19 Absorbierte Anteile der Vernichtungsstrahlung in verschiedenen Organen/Geweben [97]

Quellorgan r_k Gehirn		
Zielorgan r_h	Masse Zielorgan [kg]	$\phi(r_k \leftarrow r_h)$
Gehirn	1,47	0,16
Schädel	1,271	0,0622
Wirbelsäule	1,331	0,00283
Skelett total	10,091	0,0622
Knochenmark im Schädel	0,1785	0,0143
Rumpf	43,982	0,172
Körper total	70,036	0,292
Kopf	5,278	0,275

Die Äquivalentdosis H_T in einem Gewebe oder Organ wird durch Gleichung 55 beschrieben:

$$H_T = \sum_R w_R D_{T,R} \quad \text{Gl. 55}$$

mit $D_{T,R}$ = Absorbierte Dosis in einem Organ T, von einer Bestrahlung R
 w_R = Strahlungswichtungsfaktor

Der Strahlungswichtungsfaktor für Photonen und Elektronen ist eins.

Die Effektivdosis ist gegeben durch:

$$E = \sum_T w_T H_T \quad \text{Gl. 56}$$

mit w_T = Gewebewichtungsfaktor.

Die Einheit der Äquivalent- und Effektivdosis ist das Sievert (Sv). Die Gewebewichtungsfaktoren (w_T) sind dimensionslose Faktoren, die in Tabelle 20 wiedergegeben sind [101].

Tabelle 20 Gewebewichtungsfaktoren [37]

Gewebe/Organ	w_T
Gonaden	0,20
Rotes Knochenmark	0,12
Dickdarm	0,12
Lunge	0,12
Magen	0,12
Blase	0,05
Brust	0,05
Leber	0,05
Speiseröhre	0,05
Schilddrüse	0,05
Haut	0,01
Knochenoberfläche	0,01
Andere Organe oder Gewebe	0,05

Damit erhält man bei einer Bestrahlung des Gehirns mit einem Protonenstrahl der Primärenergie von 150 MeV, einem Strahlstrom von 2 nA bei einer zweiminütigen Bestrahlung die folgenden Energiedosen, die durch die bei der Strahlentherapie induzierten Aktivitäten den einzelnen Organen zugeführt werden (Tabelle 21). Es wurde angenommen, dass die Schädeldicke 0,8 cm beträgt.

Tabelle 21 Nach dem MIRD-Schema errechnete, durch ^{11}C - und ^{13}N Aktivitäten zugeführte Dosen und Effektivdosen.

Quellorgan Gehirn						
Zielorgan	$D_{np}(^{13}\text{N})$ [Gy]	$D_p(^{13}\text{N})$ [Gy]	$D_{np}(^{11}\text{C})$ [Gy]	$D_p(^{11}\text{C})$ [Gy]	$D_{\text{ges.}}$ [Gy]	E [Sv]
Gehirn	2,2 E-02	7,31E-03	3,04E-02	1,29E-02	7,26E-02	3,63E-03
Schädel		3,29E-03		5,81E-03	9,10E-03	4,55E-04
Wirbelsäule		1,43E-04		2,52E-04	3,95E-04	1,98E-05
Skelett		4,14E-04		7,32E-04	1,15E-03	5,73E-05
Rumpf		2,63E-04		4,64E-04	7,27E-04	3,64E-05
Körper		2,80E-04		4,95E-04	7,75E-04	3,88E-05
Kopf		3,50E-04		6,19E-03	9,69E-03	4,84E-04
Knochenmark		5,38E-03		9,51E-03	1,49E-02	1,79E-03

np: nicht penetrierende Strahlung

p: penetrierende Strahlung

Im MIRD-Schema wird die Dosis auf die gesamte Organmasse bezogen. Für die Berechnung bestrahlungsinduzierter Radionuklide ist es jedoch sinnvoll, die Dosis auf die Masse des bestrahlten Tumorgewebes zu beziehen. Da in dieser Arbeit als Beispiel die Dosis eines Hirntumors berechnet wurde, wurde ein kugelsymmetrisches Volumen von $V = 4/3\pi(3\text{cm})^3$ postuliert. Die Dosis, die durch die kurzlebigen Positronenemitter C-11 und N-13 im Tumorgewebe gebildet wird, beträgt 635 mGy/317mSv. Damit werden 35 % der applizierten Dosis (1,8 Gy) zusätzlich durch die Bildung der Positronenstrahler ^{11}C und ^{13}N verursacht. Vorausgesetzt wurde, dass die Elementzusammensetzung im Tumorgewebe der Zusammensetzung von Muskelgewebe entspricht. Die Strahlenbelastung der angrenzenden Gewebe/Organe, die durch die Annihilation dieser Positronenemitter entsteht, ist aber gering. Befindet sich aber in unmittelbarer Nähe zum bestrahlten Tumor ein Risikoorgan, z.B. Hirnstamm oder Sehnerv, dann könnte die Vernichtungsstrahlung der gebildeten Positronenemitter zu bleibenden Schäden führen.

6.2 Aktivierung des Kollimatormaterials

Die Strahlkollimatoren in unmittelbarer Nähe des Patienten bestehen häufig aus Blei, Titan oder Messing. In den iThemba LABS in Somerset West/Südafrika z.B. sind sie nur 27,5 cm vom Isozenter entfernt, d.h. die Patienten sind während der Bestrahlung nur 27,5 cm von den Kollimatoren entfernt. Abb. 50 zeigt das Strahl-

modifizierungssystem der 200 MeV horizontalen Beamline in den iThemba LABS. Um die Kollimatoraktivierung abzuschätzen, wurde die produzierte Aktivität, die unter den folgenden Therapiebedingungen [92] entstanden ist, für die in Tabelle 22 aufgelisteten Nuklide berechnet:

- pro Beamline: 10 Patienten/Tag
- Strahlstrom: 2 nA
- Dosisleistung: 9-10 cGy/min
- Patientenbestrahlungszeit: 2 min
- Patientenpositionierung: 20-40 min

Zur Untersuchung der langlebigen Aktivierungsprodukte in den Kollimatoren wurde mit einer tägliche Strahlzeit von 20 min pro Bestrahlungsraum, 5 Bestragungstagen pro Woche und 52 Betriebswochen pro Jahr gerechnet. Die Aktivität in einem Kollimatorvolumen von $V = (5 \text{ cm} \times 0,5 \text{ cm} \times 0,5 \text{ cm})$ wurde nach dem Bildungs- und Zerfallsgesetz berechnet und gegen die Betriebszeit von einem Jahr aufgetragen:

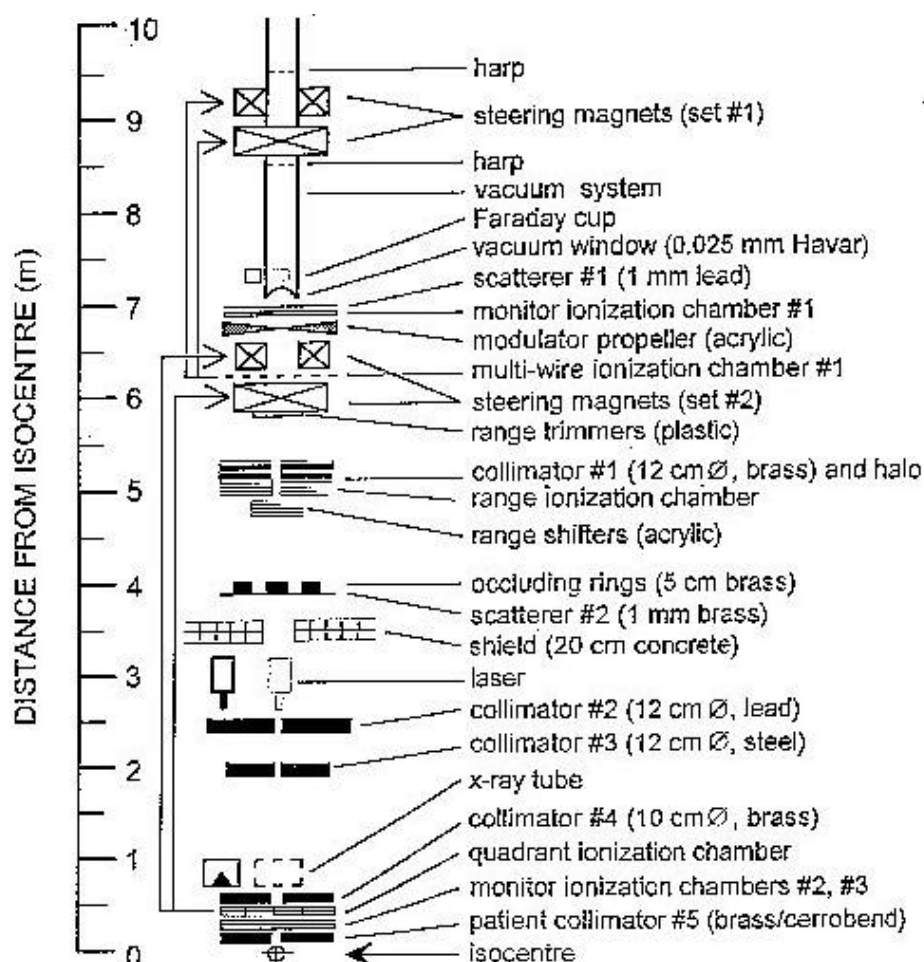


Abb. 50 200 MeV Strahlmodifizierungssystem für die Protonentherapie in den iThemba LABS in Somerset West/Südafrika [102].

1. Die Aktivitätsbestimmung der Nuklide erfolgte nach der Gleichung der Integralen Ausbeute, normiert auf eine zwanzigminütige Bestrahlungszeit und einen Strahlstrom von 2 nA => A_1 . Die Halbwertszeiten sind so lang, dass der Zerfall während der Patientenpositionierung nicht berücksichtigt wurde.

2. Zerfall über Nacht während $\Delta t = 24$ h:

$$A_2 = A_1 \left(e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \Delta t} \right) \quad \text{Gl. 57}$$

3. Neubildung während des 2. Bestrahlungstages mit einer effektiven Strahlzeit von 20 min; A_1 bleibt konstant:

$$A_3 = A_1 + A_2 \quad \text{Gl. 58}$$

4. Zerfall über Nacht während $\Delta t = 24$ h:

$$A_4 = A_3 \left(e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \Delta t} \right) \quad \text{Gl. 59}$$

5. Neubildung während des 3. Bestrahlungstages mit einer effektiven Strahlzeit von 20 min; A_1 bleibt konstant:

$$A_5 = A_1 + A_4 \quad \text{Gl. 60}$$

6. Zerfall über Nacht während $\Delta t = 24$ h:

$$A_6 = A_5 \left(e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \Delta t} \right) \quad \text{Gl. 61}$$

7. Neubildung während des 4. Bestrahlungstages mit einer effektiven Strahlzeit von 20 min; A_1 bleibt konstant:

$$A_7 = A_1 + A_6 \quad \text{Gl. 62}$$

8. Zerfall über Nacht während $\Delta t = 24$ h:

$$A_8 = A_7 \left(e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \Delta t} \right) \quad \text{Gl. 63}$$

9. Neubildung während des 5. Bestrahlungstages mit einer effektiven Strahlzeit von 20 min; A_1 bleibt konstant:

$$A_9 = A_1 + A_8 \quad \text{Gl. 64}$$

10. Zerfall übers Wochenende während $\Delta t = 72$ h:

$$A_{10} = A_9 \left(e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \Delta t} \right) \quad \text{Gl. 65}$$

Tabelle 22 Zerfallsdaten [8] der untersuchten Aktivierungsprodukte und spezifische Gammastrahlenkonstante

Nuklid	$T_{1/2}$	E_γ [keV]	I_γ [%]	$k_\gamma \left[\frac{\mu\text{Sv} \cdot \text{m}^2}{\text{GBq} \cdot \text{h}} \right]$
aus den Kernreaktionen mit Titan				
$^{44\text{m}}\text{Sc}$	58,6 h	271,1	86,7	1,05
^{46}Sc	83,82 d	889,2	100,0	7,60
		1120,5	100,0	
^{47}Sc	3,35 d	159,3	67,9	0,03
^{48}Sc	43,67 h	175,3	7,4	12,41
		983,5	100,0	
		1037,5	97,5	
		1212,9	2,4	
		1312,1	100,0	
^{48}V	15,97 d	983,5	100,0	10,46
		1312,0	97,6	
aus den Kernreaktionen mit Blei				
^{205}Bi	15,31 d	1764,3	32,5	9,06
		703,5	31,1	
		987,6	16,1	
^{206}Bi	6,24 d	803,1	98,9	10,81
		881,0	66,2	
		516,2	40,8	
		1718,7	31,9	
		537,5	30,5	
^{207}Bi	31,55 a	569,7	97,7	9,55
		1063,7	74,5	
		1770,2	6,87	
^{203}Hg	46,61 d	279,2	81,46	0,91
^{201}Tl	72,91 h	167,4	10,0	2,09
		135,3	2,6	
^{202}Tl	12,23 d	439,6	91,4	3,70
^{203}Pb	51,87 h	279,2	80,8	2,93

Für einen γ -Strahler, der pro Zerfall ein γ -Quant der Energie E_γ emittiert ergibt sich die spezifische Gammastrahlenkonstante k_γ aus Abb. 51. Bei einem komplizierteren Gammaskpektrum erhält man k_γ durch Summation der mit den Emissionswahrscheinlichkeiten der Linien multiplizierten Werte für die einzelnen γ -Energien [103].

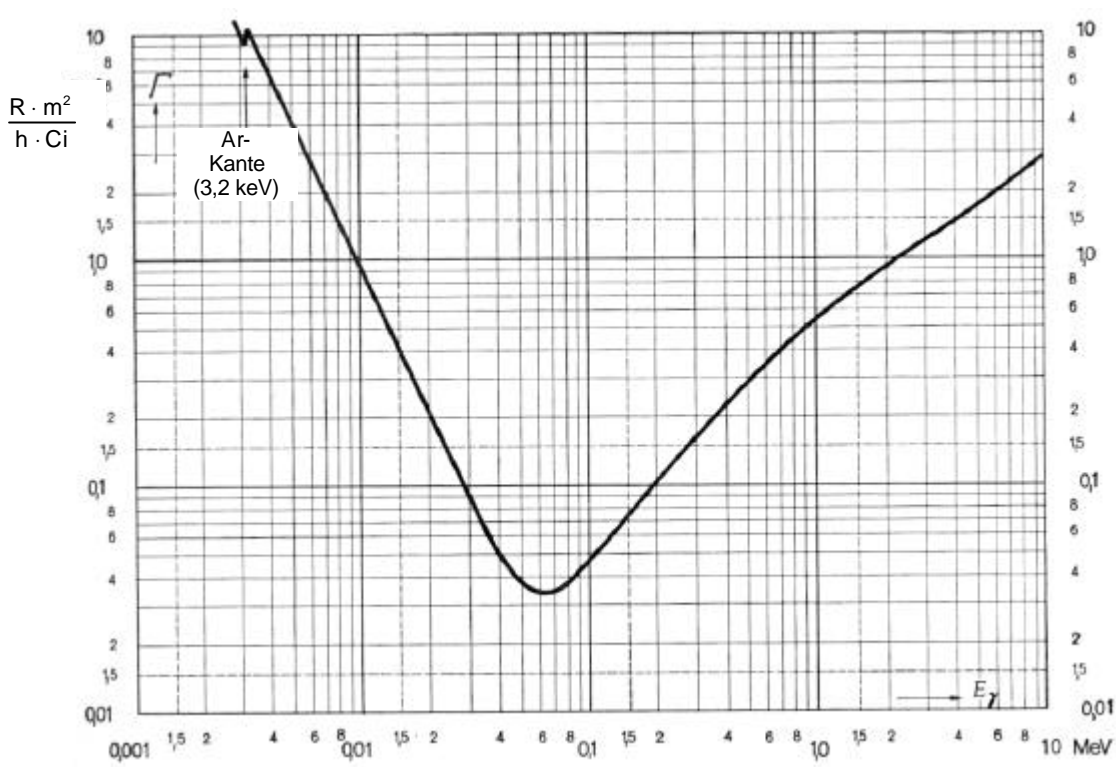


Abb. 51 Die spezifische Gammastrahlenkonstante als Funktion der Photonenenergie E_γ [104].

6.2.1 Langlebige Aktivierungsprodukte von Titan

Als langlebige Aktivierungsprodukte von Titan wurden die Gammastrahlung emittierenden Nuklide $^{44m,46-48}\text{Sc}$ und ^{48}V betrachtet. Die bekannten Anregungsfunktionen wurden der Literatur entnommen [105-108]. Die kumulierte Aktivität der Nuklide ist in Abb. 52 und Abb. 53 gegen die Betriebszeit von einem Jahr aufgetragen.

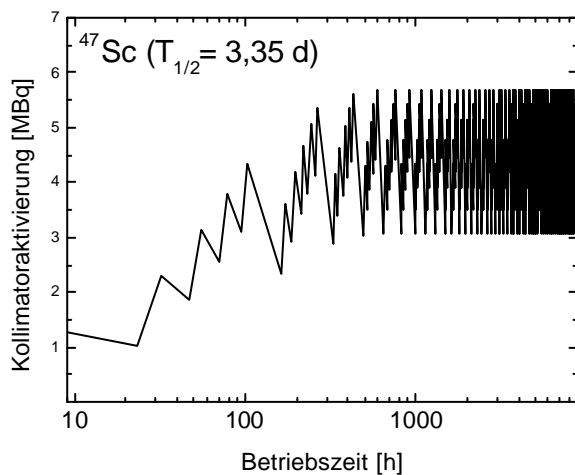
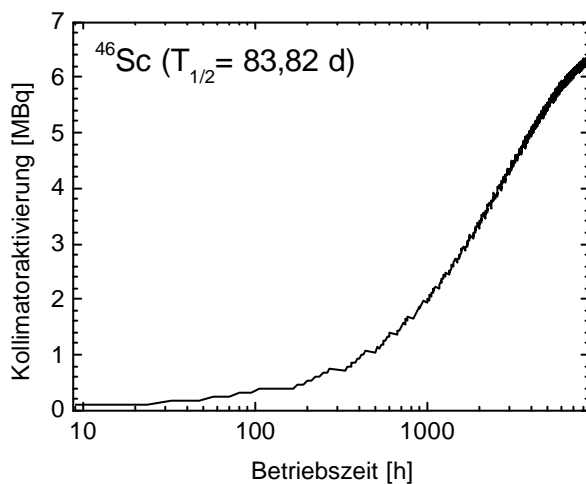
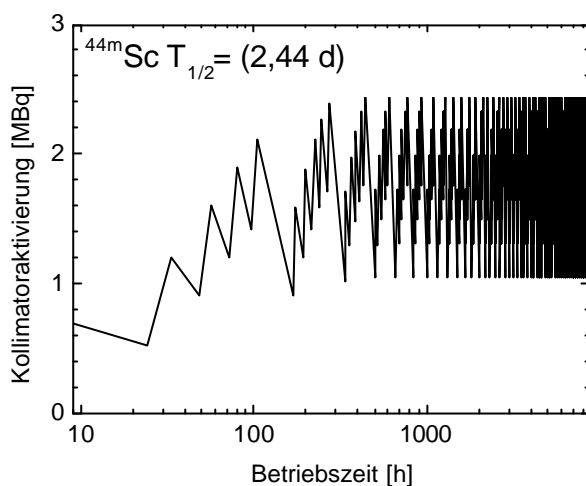


Abb. 52 Zeitlicher Verlauf der Aktivierungsprodukte $^{44m,46,47}\text{Sc}$ in einem 5 cm dicken Titankollimator.

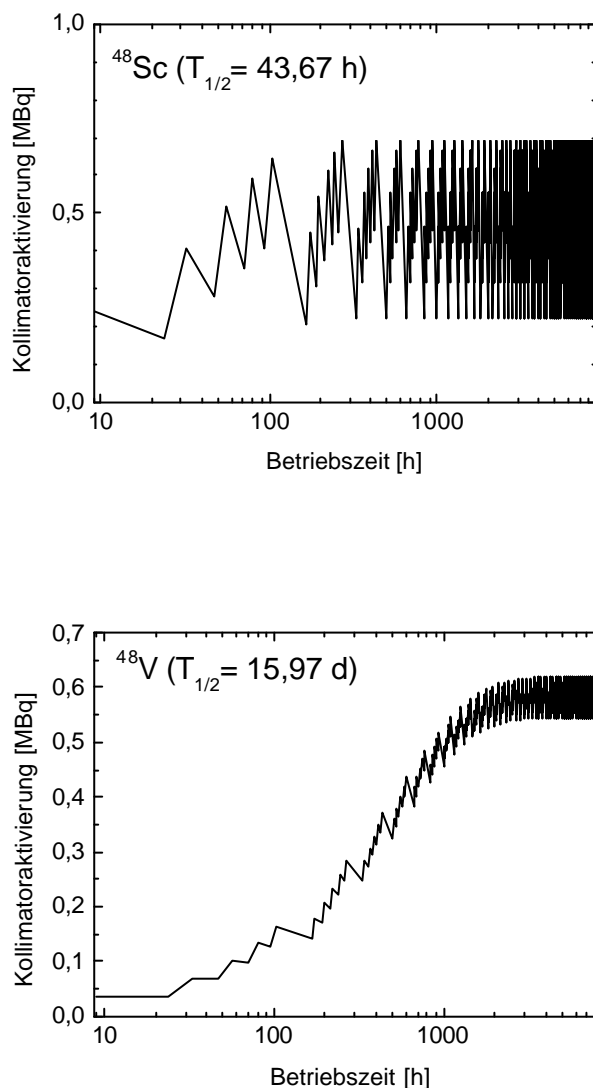


Abb. 53 Zeitlicher Verlauf der Aktivierungsprodukte ^{48}Sc und ^{48}V in einem 5 cm dicken Titankollimator.

Beim Sc-44m ($T_{1/2} = 2,44 \text{ d}$) kommt es während den Betriebspausen (über Nacht und während des Wochenendes) nicht zu einem vollständigen Abklingen der Aktivität. Nach ca. 11 Tagen ist die Sättigungsaktivität erreicht. Dann halten sich Neubildung und Zerfall die Waage. Die Aktivität schwankt zwischen 1 und 2,4 MBq. Ähnlich verhalten sich die Nuklide Sc-47 ($T_{1/2} = 3,35 \text{ d}$) und Sc-48 ($T_{1/2} = 43,67 \text{ h}$). Beim Sc-47 schwankt die Aktivität zwischen 3 und 5,7 MBq. Täglich bilden sich hier ca. 1,3 MBq. Während eines Bestrahlungstages bilden sich nur ungefähr 0,2 MBq Sc-48. Sc-46 ($T_{1/2} = 83,82 \text{ d}$) wird aufgrund seiner langen Halbwertszeit im Material allmählich angereichert. Allerdings ist die produzierte Aktivität pro Betriebstag mit

etwa 0,08 MBq sehr niedrig. Innerhalb eines Jahres werden ungefähr 6,4 MBq ^{46}Sc gebildet.

Die Anreicherung von V-48 ($T_{1/2} = 15,97$ d) im Titankollimator ist ebenfalls sehr gering da täglich nur 0,035 MBq V-48 gebildet werden. Die Sättigungsaktivität von 0,6 MBq ist nach ca. 85 Tagen erreicht.

Insgesamt werden innerhalb eines Jahres nur max. 15,4 MBq der untersuchten langlebigen Aktivierungsprodukte gebildet. Aus diesem Gesichtspunkt betrachtet, stellt Titan ein gutes Kollimatormaterial dar, da die gebildeten Aktivitäten nur eine geringe Strahlungsbelastung für das Bedienungspersonal ausmachen.

Die kumulierte Aktivität der weiche Strahlung emittierenden Nuklide ^{45}Ca und ^{49}V ist in Abb. 54 dargestellt. Hier wurden die in dieser Arbeit gemessenen Daten zugrunde gelegt. Innerhalb eines Jahres werden ungefähr 1,4 MBq ^{45}Ca und 0,46 MBq ^{49}V gebildet. Da ^{45}Ca ein β^- -Strahler ist, ^{49}V durch Elektroneneinfang zerfällt und beide Nuklide kleine begleitende γ -Strahlung aufweisen, wird diese weiche Strahlung im Kollimatormaterial absorbiert und trägt nicht zur Strahlenbelastung des bedienenden Personals bei. Beide Nuklide müssen nur bei der Entsorgung berücksichtigt werden.

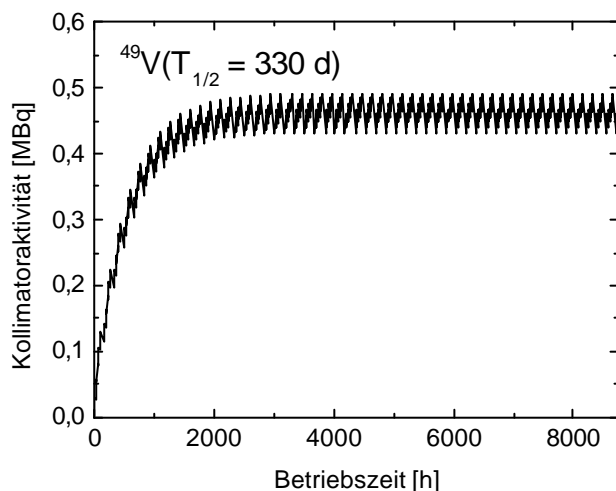
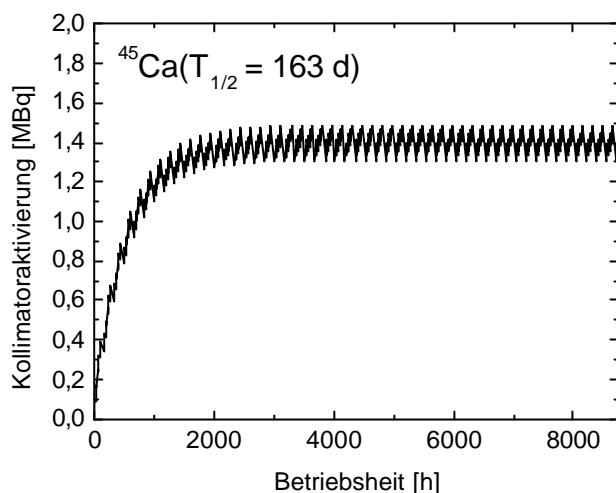


Abb. 54 Zeitlicher Verlauf der Aktivierungsprodukte ^{45}Ca und ^{49}V in einem 5 cm dicken Titankollimator.

6.2.2 Langlebige Aktivierungsprodukte von Blei

Die Anreicherung der langlebigen Aktivierungsprodukte $^{205-207}\text{Bi}$, $^{201,202}\text{Tl}$, ^{203}Hg und ^{203}Pb unter Therapiebedingungen wurde untersucht. Auch hierbei wurden die Anregungsfunktionen der Literatur entnommen [109-112]. In Abb. 55, Abb. 56 und Abb. 57 ist der zeitliche Verlauf der Aktivierungsprodukte in einem Bleikollimator während eines Jahres dargestellt.

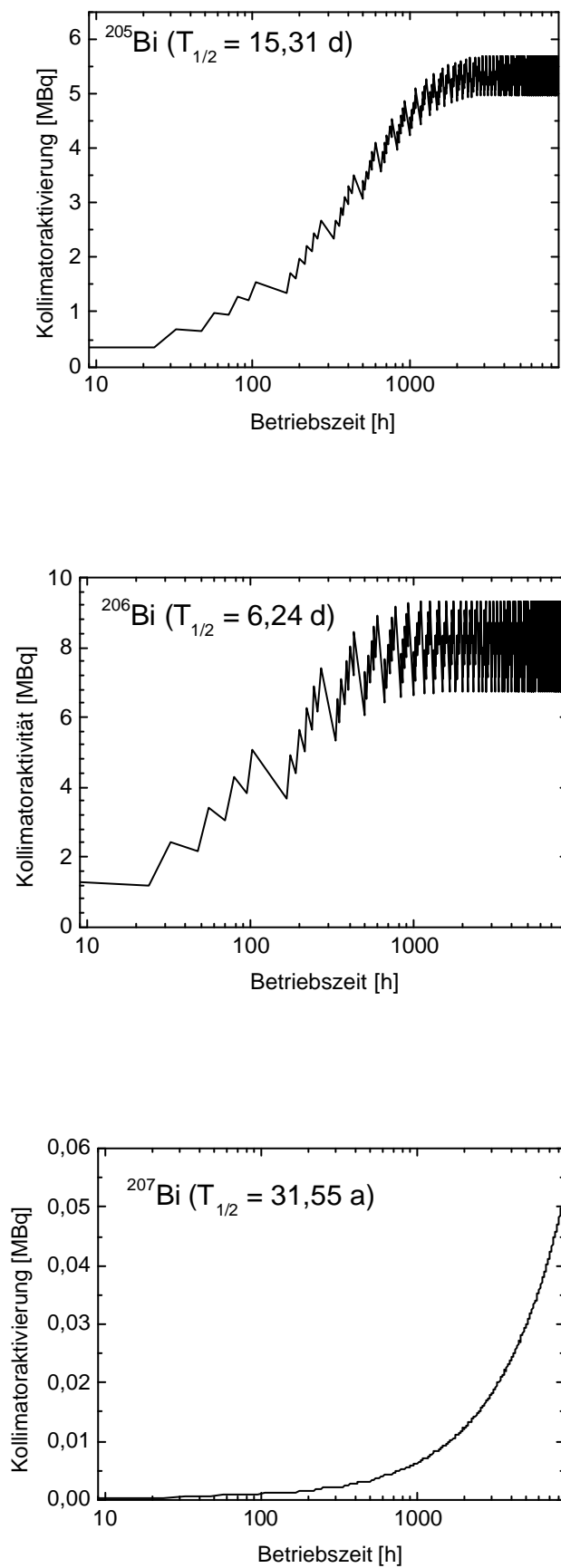


Abb. 55 Zeitlicher Verlauf der Aktivierungsprodukte $^{205-207}\text{Bi}$ in einem 5 cm dicken Bleikollimator.

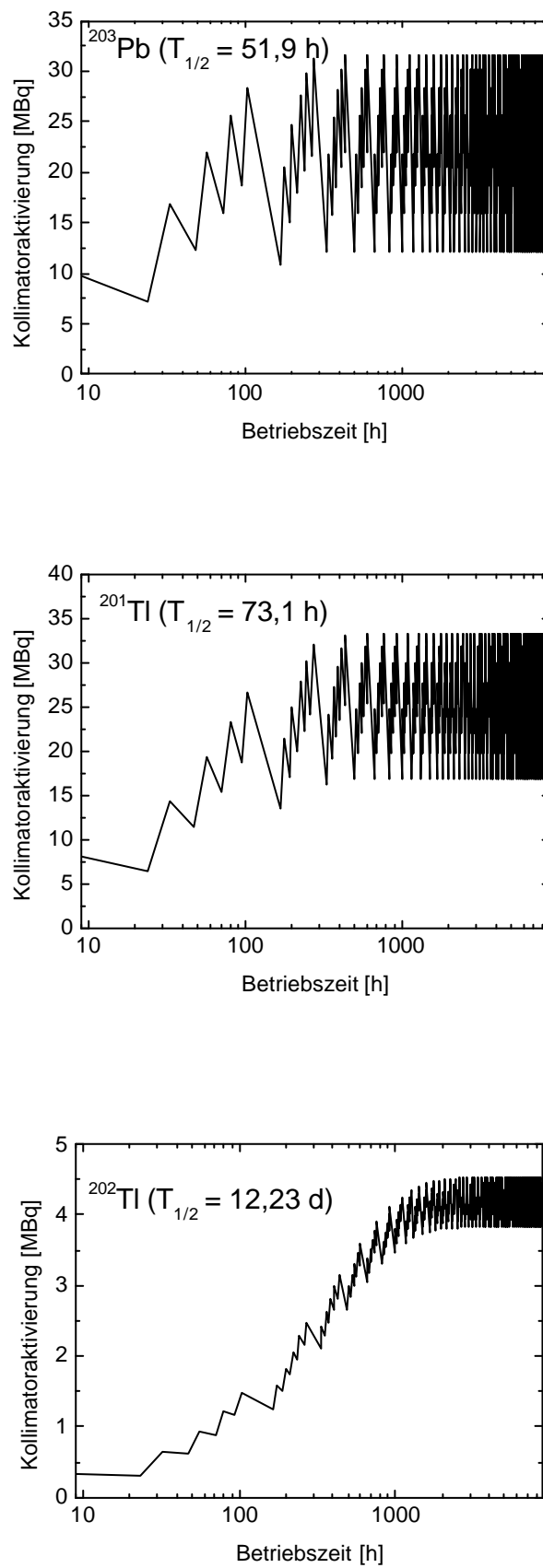


Abb. 56 Zeitlicher Verlauf der Aktivierungsprodukte ^{203}Pb und $^{201,202}\text{Tl}$ in einem 5 cm dicken Bleikollimator.

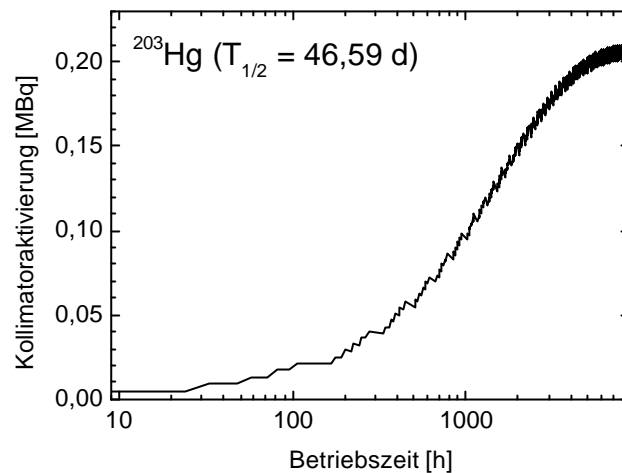


Abb. 57 Zeitlicher Verlauf des Aktivierungsprodukts ^{203}Hg in einem 5 cm dicken Bleikollimator.

Bei einer täglichen Strahlzeit von 20 min mit 200 MeV Protonen und einem Strahlstrom von 2 nA bilden sich in einem 5 cm dicken Bleikollimator ca. 5 MBq ^{205}Bi , das sich anfangs langsam akkumuliert. Nach ungefähr 60 Tagen ist die Sättigungsaktivität erreicht und die Aktivität schwankt zwischen 5,7 und 5 MBq. Pro Betriebstag bilden sich ungefähr 8,6 MBq ^{206}Bi . Auch hier klingt die Aktivität in den Betriebspausen nicht ab. Die Sättigung ist nach ca. 30 Tagen erreicht und die Aktivität schwankt zwischen 9,3 und 7,9 MBq. ^{207}Bi wird aufgrund seiner langen Halbwertszeit im Material allmählich angereichert. Innerhalb eines Jahres bilden sich aber nur 0,05 MBq, die Sättigungsaktivität ist aber binnen eines Jahres noch nicht erreicht. Die produzierte Aktivität pro Betriebstag ist mit 0,2 kBq sehr gering.

Was ^{203}Hg angeht, so werden täglich nur 4,3 kBq gebildet. Innerhalb eines Jahres haben sich ungefähr 0,2 MBq im Kollimator angereichert. Die Sättigung ist nach einem Jahr gerade erreicht.

Beim ^{203}Pb kommt es während der Betriebspausen nicht zum vollständigen Abklingen der Aktivität. Es findet eine merkliche Akkumulation statt. Nach 11 Tagen halten sich Neubildung und Zerfall in etwa die Waage. Die Aktivität schwankt zwischen 32 und 12 MBq. Ähnlich verhält es sich mit $^{201,202}\text{Tl}$. Pro Betriebstag werden 8 MBq ^{201}Tl und 0,3 MBq ^{202}Tl gebildet. Das führt nach 11 Tagen zu einer

Sättigung beim TI-201 und die Aktivität schwankt zwischen 33 und 16 MBq. Nach 66 Tagen ist die Sättigungsaktivität von ^{202}TI erreicht. Hier schwankt die Aktivität zwischen 4,5 und 3,8 MBq.

Während der Betriebszeit von einem Jahr bilden sich insgesamt 65 MBq langlebige Aktivierungsprodukte in einem Bleikollimator. Nach einem Jahr ist für alle Nuklide außer ^{207}Bi die Sättigungsaktivität erreicht. Da pro Jahr nur ca. 0,05 MBq ^{207}Bi gebildet werden, ist Blei ebenso wie Titan ein gutes Kollimatormaterial.

Die kumulierte Aktivität des reinen β^- -Strahlers ^{204}TI ist in Abb. 58 dargestellt. Hier wurde die an die gemessenen Daten dieser Arbeit angepasste Kurve (Eye-guide) bis 110 MeV zugrunde gelegt; danach wurde die theoretische Kurve verwendet. Die Aktivität reichert sich langsam im Kollimator an und nach einem Jahr haben sich ungefähr 0,8 MBq ^{204}TI gebildet. Diese β^- -Strahlung wird im Kollimatormaterial absorbiert und trägt nicht zur Strahlenbelastung des bedienenden Personals bei.

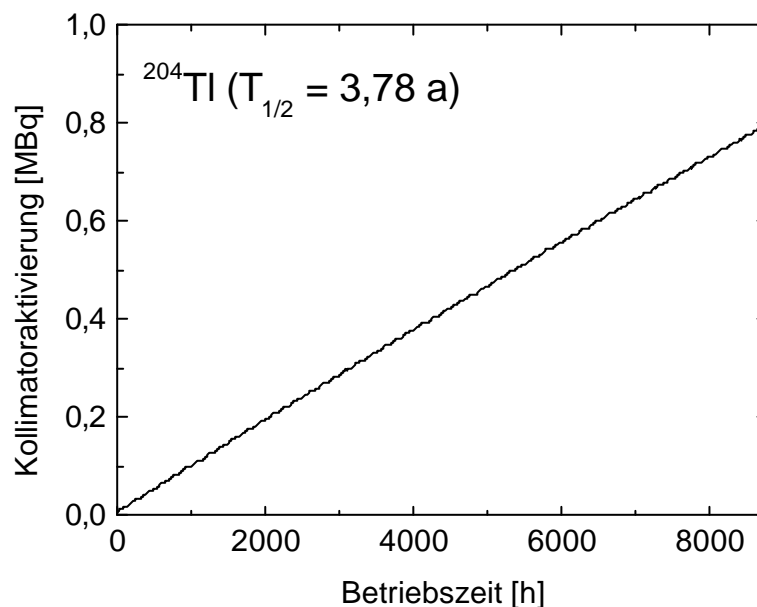


Abb. 58 Zeitlicher Verlauf des Aktivierungsprodukts ^{204}TI in einem 5 cm dicken Bleikollimator.

6.2.3 Dosisleistung

Die langlebigen, γ -Strahlung emittierenden Aktivierungsprodukte verursachen nach einem Jahr in einem Abstand von 27,5 cm eine Ionendosisleistung von 0,22 $\mu\text{Sv/h}$ im Fall eines Titankollimators und 1,04 $\mu\text{Sv/h}$ im Fall eines Bleikollimators. Auch wenn die Zeit zur Patientenpositionierung die eigentliche Bestrahlungsdauer weit überschreitet, ist diese vom Kollimator ausgehende äußere Strahleneinwirkung für die Patienten sehr gering. Selbst für das Bedienungspersonal stellt sie keine Gefahr dar. Geht man davon aus, dass sich eine Person 5 Tage die Woche an 52 Wochen im Jahr in 27,5 cm Abstand zum Kollimator 5 Stunden am Tag befindet, dann beträgt die Jahresdosis bei einem Titankollimator nur 0,29 mSv und bei einem Bleikollimator 1,35 mSv. Die Grenzwerte der effektiven Dosis im Kalenderjahr betragen nach § 55 Abs. 1 Satz 1 für den Schutz beruflich strahlenexponierter Personen bei deren Berufsausübung 20 mSv [37].

7 Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Kernreaktionen an biologisch relevanten Elementen und an Strahlkollimatormaterialien im Hinblick auf die Protonentherapie untersucht. Die Bestimmung der Wirkungsquerschnitte erfolgte mit Hilfe der Folienstapel-Aktivierungsmethode im Energiebereich bis 200 MeV. Dazu wurde an vier verschiedenen Zyklotronen bestrahlt. Die Strahlstrombestimmungen wurden mittels Monitorreaktionen durchgeführt. Zur Bestimmung der Radionuklidaktivitäten wurde γ - und Röntgenspektrometrie, Durchflussproportional- β - und Flüssigszintillationszählung eingesetzt. Die Aktivität der kurzlebigen Positronenemitter konnte zerstörungsfrei gemessen werden, während für die Messung der Kollimatoraktivierungsprodukte ^{45}Ca , ^{49}V und ^{204}Tl eine radiochemische Trennung erforderlich war. Die ermittelten Daten wurden mit Ergebnissen der theoretischen Rechnungen verglichen. Ferner wurden mit Hilfe der ermittelten Kerndaten sowohl die im Kollimatormaterial erzeugten Radionuklidaktivitäten als auch die im Gewebe-Zielvolumen gebildeten Aktivitäten und dadurch zugeführten Energiedosen abgeschätzt.

Kurzlebige Positronenemitter

Die Anregungsfunktionen der kurzlebigen Positronenstrahler ^{11}C und ^{13}N wurden für die Targetelemente C, N und O für Protonenenergien bis 200 MeV ergänzt. Die vervollständigten Datensätze wurden zur Validierung von theoretischen Modellrechnungen mit dem Rechencode ALICE-IPPE eingesetzt. Da es sich hier um leichte Kerne handelt, für die das optische Modell und die Kernniveaudichten nicht hinreichend genau bekannt sind, waren die statistischen Inputparameter schwierig zu benutzen. Deshalb wurden verschiedene optionale Parameter eingesetzt. Bei der protoneninduzierten Reaktion an Kohlenstoff liegt das Maximum der theoretischen Kurve ca. 14 % tiefer als die experimentellen Werte. Vergleicht man diese Abweichung mit den absoluten Fehlern der bestimmten Wirkungsquerschnitte ($\sim 20\%$), ist die Übereinstimmung zufriedenstellend. Bei höheren Energien liegt die theoretische Kurve etwa um den Faktor 2 unterhalb der experimentellen Kurve. Bei der $^{nat}\text{N}(p,x)^{11}\text{C}$ -Reaktion wird deutlich, dass sowohl die Verdampfung von Komplexteilchen (α -Teilchen) im Niederenergiebereich als auch die Vielteilchenemission bei höheren Energien von der Theorie gut beschrieben werden kann. Bei der Bildung von N-13 durch die protoneninduzierten Reaktionen an natürlichem Stickstoff stimmt

die berechnete Kurve bis 30 MeV gut mit den experimentellen Wirkungsquerschnitten überein. Oberhalb dieser Energie liegt sie über den in dieser Arbeit ermittelten Werten aber deutlich unterhalb der Literaturwerte. Bei der ${}^{\text{nat}}\text{O}(p,x){}^{11}\text{C}$ -Reaktion besteht eine exzellente Übereinstimmung zwischen Theorie und Experimenten. Die normierte Modellrechnung beschreibt die Vergleichgewichtsverdampfung von Komplexeilchen und den multiplen Vergleichgewichtszerfall sehr gut. Die experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte der ${}^{\text{nat}}\text{O}(p,x){}^{13}\text{N}$ -Reaktion stimmen gut mit der theoretischen Kurve überein, außer in der Energieregion von 65 bis 85 MeV, in der die theoretische Kurve um den Faktor 2 höher ist. Obwohl eine zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment erzielt werden konnte, sind experimentelle Messungen unabdingbar, da man keine Standard-Parameter benutzen kann.

Gewebeaktivierung

Mit Hilfe der gewonnenen Kerndaten ließ sich die Aktivierung von menschlichem Gewebe mit Protonen berechnen. Die integralen Ausbeuten sind abhängig vom Gewebe, das bestrahlt wird. Bei einer zweiminütigen Bestrahlung mit 200 MeV Protonen und einem Strahlstrom von 2 nA bilden sich im Bereich der Bragg-Peaks 725 MBq ${}^{11}\text{C}$ im Muskelgewebe, 2909 MBq im Fettgewebe und 415 MBq im Knochen. Des weiteren werden 685 MBq ${}^{13}\text{N}$ im Muskelgewebe, 208 MBq im Fettgewebe und 346 MBq im Knochen gebildet.

Die Dosisberechnung wurde für einen engumgrenzten Hirntumor, der mit einem kleinen Bestrahlungsfeld behandelt werden kann, durchgeführt. Bei einer Primärenergie von 150 MeV Protonen werden 6 MeV in einem 0,8 cm dicken Schädelknochen absorbiert und 17 MeV in einem 1,8 cm dicken Knochen. Damit bilden sich im weichen Gewebe zwischen 476 und 376 MBq ${}^{11}\text{C}$ und zwischen 411 und 335 MBq ${}^{13}\text{N}$.

Zur Abschätzung der Energiedosis, die durch die bei der Strahlentherapie induzierten Aktivitäten den einzelnen Organen zugeführt wird diente das MIRD-Konzept. Die Dosis, die durch die kurzlebigen Positronenemitter C-11 und N-13 im Tumorgewebe gebildet wird, beträgt 635 mGy/317mSv. Damit werden 35 % der applizierten Dosis (1,8 Gy) zusätzlich durch die Bildung der Positronenstrahler ${}^{11}\text{C}$ und ${}^{13}\text{N}$ verursacht. Die Strahlenbelastung der angrenzenden Gewebe/Organe, die durch die Annihilation dieser Positronenemitter entsteht, ist aber gering.

Aktivierung von Kollimatormaterialien

Die Strahlkollimatoren in unmittelbarer Nähe des Patienten bestehen häufig aus Blei, Titan oder Messing. In dieser Arbeit wurden die langlebigen Aktivierungsprodukte von Titan und Blei untersucht. Dabei wurde Schwerpunkt auf die noch nicht erforschten weiche Strahlung emittierenden Radionuklide ^{45}Ca , ^{49}V und ^{204}Tl gelegt. Zur Herstellung dünner Messpräparate wurden die Nuklide radiochemisch von den aktivierten Targetmaterialien abgetrennt. Dazu wurde die Ionenaustauscher-Chromatographie eingesetzt. Die ^{45}Ca -Aktivität wurde zum einen über β -Zählung mit Hilfe eines Durchflussproportionalzählers und zum anderen mittels Flüssigszintillationszählung bestimmt. Der Röntgenstrahler ^{49}V wurde mit einem Si(Li)-Halbleiterdetektor untersucht und die β -Aktivität von ^{204}Tl wurde ebenfalls mittels eines Durchflussproportionalzählers ermittelt.

Die $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x)^{45}\text{Ca}$ -Reaktion wurde erstmals im Energiebereich bis 200 MeV untersucht. Die Funktion wird in Verlauf und Größenordnung zufriedenstellend durch die Theorie angenähert. Für die $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,x)^{49}\text{V}$ -Reaktion konnten erste Wirkungsquerschnitte im Energiebereich von 40 bis 200 MeV bestimmt werden. Der Vergleich mit der Kernmodellrechnung ist sehr gut. Die Anregungsfunktion der $^{\text{nat}}\text{Pb}(p,x)^{204}\text{Tl}$ -Reaktion konnte von 40 bis 90 MeV erstmalig bestimmt werden. Allerdings konnte diese Reaktion nicht zufriedenstellend durch die Theorie modelliert werden.

Zur Untersuchung der langlebigen Aktivierungsprodukte in den Kollimatoren wurde mit einer täglichen Strahlzeit von 20 min pro Bestrahlungsraum, 5 Bestrahlungstagen pro Woche und 52 Betriebswochen pro Jahr gerechnet. Die Aktivität in einem Kollimatorvolumen von $V = (5 \text{ cm} \times 0,5 \text{ cm} \times 0,5 \text{ cm})$ wurde nach dem Bildungs- und Zerfallsgesetz berechnet. In einem Titankollimator werden insgesamt innerhalb eines Jahres nur max. 17 MBq der untersuchten langlebigen Aktivierungsprodukte gebildet. Somit stellt Titan ein gutes Kollimatormaterial dar, da die gebildeten Aktivitäten nur eine geringe Strahlenbelastung für das Bedienungspersonal ausmachen.

In einem Jahr bilden sich insgesamt 65 MBq langlebige Aktivierungsprodukte in einem Bleikollimator. Nach einem Jahr ist für alle Nuklide außer ^{207}Bi die Sättigungsaktivität erreicht. Da pro Jahr nur ca. 0,05 MBq ^{207}Bi gebildet werden, ist Blei ebenso wie Titan ein gutes Kollimatormaterial.

8 Literatur

- [1] Bohr, N., Neutron capture and nuclear constitution, *Nature*, **137**, 344 (1936).
- [2] Lieser K. H., Einführung in die Kernchemie, Verlag Chemie, Weinheim, 3.Auflage (1991).
- [3] Musiol, C., Ranft, J., Reif, R., Seeliger, D., Kern- und Elementarteilchenphysik, VCH, Weinheim (1988).
- [4] Weißkopf, V., Ewing, D. H., On the yield of nuclear reactions with heavy elements, *Phys. Rev.* **57**, 472 (1940).
- [5] Griffin, J.J., Statistical Model of Intermediate Structure, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 478 (1966).
- [6] Gadioli, E., Hodgson, P.E., Pre-equilibrium Nuclear Reactions, Clarendon Press, Oxford (1992).
- [7] Qaim, S.M., Radiochemical studies of complex particle emission in low and intermediate energy reactions, *Radiochim. Acta* **70/71**, 163 (1995).
- [8] Firestone, R.B., Table of Isotopes, CD-Rom Edition Version 1.0, Wiley-Interscience (1996).
- [9] Qaim, S.M., Cyclotron production of medical radionuclides, A. Vértes, S. Nagy, Z. Klencsár (eds.), Handbook of Nuclear Chemistry, Vol. 4, 47-79, Kluwer Academic Publishers (2003).
- [10] Bethe, H., Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie, *Ann. Phys.* **5**, 325 (1930).
- [11] Livingston, M. S., Bethe, H. A., Nuclear dynamics, experimental. *Rev. Mod. Phys.* **9**, 245 (1937).
- [12] Bloch, F., Zur Bremsung rasch bewegter Teilchen beim Durchgang durch Materie, *Ann. Phys.* **16**, 285 (1933).
- [13] 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).
- [14] Sternheimer, R. M., Density effect for the ionisation loss in various materials, *Phys.Rev.* **103**, 511 (1956).
- [15] Janni, J.F., Proton range-energy tables, 1 keV-10 GeV, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **27**, 147-339 (1982).
- [16] Berger, M.J., Coursey, J.S., and Zucker, M.A. (1999). *ESTAR, PSTAR, and*

- ASTAR: Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions* (version 1.2.2), [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/Star> [2003, May 23]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, USA.
- [17] Ziegler, J.F., Biersack, J.P., Littmark, U., *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Bd. 1, Pergamon Press, New York (1985).
- [18] Römpp Chemie Lexikon, Hrsg. J. Falbe, M. Regitz, Georg Thieme Verlag, 9. korrigierte Auflage.
- [19] Tárkányi F., Takács S., Gul K., Hermanne A., Mustafa M. G., Nortier M., Oblozinský, Qaim S. M., Scholten B., Shubin Yu. N. Youxiang Zhuang, Beam monitor reactions, in *Charged-Particle Cross Section Database for Medical Radioisotope Production, Diagnostic radioisotopes and monitor reactions*, IAEA-TECDOC-1211, 49-149 (2001).
(http://iaeand.iaea.or.at/medical/Monitor_Reactions.html)
- [20] Chadwick, J., Possible existence of a neutron, *Nature*, **129**, 312 (1932).
- [21] Lawrence, J.H., Aebersold, P.C., Lawrence, E.O., Comparative effects of X-rays and neutrons on normal and tumor tissue, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **22**, 543 (1936).
- [22] Raju, M.R., *Heavy particle radiotherapy*, Academic Press, New York, 1980.
- [23] Wilson, R.R., Radiological use of fast protons, *Radiol.* **47**, 487 (1946).
- [24] Tobias, C.A., Anger, H.O., Lawrence, J.H., Radiological use of high energy deuterons and alpha particles, *Am. J. Roetgenol.* **67**, 1 (1952).
- [25] Castro, J.R., Quivey, J.M., Lyman, J.T., Chen, G.T., Phillips, T.L., Tobias, C.A., Alpen, E.L., Current status of clinical particle radiotherapy at Lawrence Berkeley Laboratory, *Cancer* **46**, 633 (1980).
- [26] Qaim, S. M., Nuclear data for medical applications: an overview, *Radiochim. Acta* **89**, 4-5, 189 (2001).
- [27] Wambersie, A., Gahbauer, R. A., Hadrons (protons, neutrons, heavy ions) in radiation therapy: rationale, achievements and expectations, *Radiochim. Acta* **89**, 245 (2001).
- [28] Chadwick, M. B., Jones, D. T. L., Arendse, G.J., Cowley, A. A., Richter, W. A., Lawrie, J. J., Newman, R. T., Pilcher, J.V., Smit, F. D., Steyn, G. F., Koen, J. W., Stander, J. A., Nuclear interaction cross sections for proton radiotherapy,

- Nucl. Phys. **A654**, 1051c (1999).
- [29] Jones, D.T.L. Overview of hadron therapy : rationales, present status and future prospects, *Radiochim. Acta* **89**, 235 (2001).
- [30] White R. M., Chadwick M. B., Chandler W. P., Hartmann Siantar C.L., Westbrook C.K., *Advances in nuclear data and all-particle transport for radiation oncology*, Nuclear Data for Science and Technology (Ed. Dickens J.K.), Gatlinburg, Tennessee, 1023 (1994).
- [31] International Commission on Radiological Protection, Report of the task group on reference man, ICRP Publication 23, Oxford, UK: Pergamon Press, (1975).
- [32] ICRU Report 37, Stopping powers for electrons and positrons, International Commission on Radiation Units and Measurements, Bethesda, MD, USA (1984).
- [33] Hughes H. G., Adams K. J., Chadwick M. B., Comly J. C., Frankle S. C., Hendricks J. S., Little R. C., Prael R. E., Waters L. S., Young P. G. (1998). "Status of the MCNP/LCS merger project," in Proc. of the 1998 Radiation Protecting and Shielding Division Topical Conference, Los Alamos National Laboratory (American Nuclear Society, La Grange Park, IL), 188 (1998).
- [34] ICRU Report 63, Nuclear Data for Neutron and Proton Radiotherapy and for Radiation Protection, Bethesda, MD, USA (1998).
- [35] Chadwick, M.B., Nuclear reactions in proton, neutron and photon radiotherapy, *Radiochim. Acta*, **89**, 325 (2001).
- [36] Jones, D.T.L., Fast neutron and proton therapy sources, *Radiochim. Acta*, **89**, 265-277 (2001).
- [37] Strahlenschutzverordnung: Neufassung 2001; Textausgabe mit einer erläuternden Einführung / von Hans-Michael Veith. 6., völlig neu bearb. Aufl., Stand: 1. August 2001. Köln: Bundesanzeiger-Verl., 2001.
- [38] ICRU Report 51, Quantities and units in radiation protection dosimetry, Bethesda, MD (1993).
- [39] Herzog, H., Dosimetry related to SPECT and PET applications, *Radiochim. Acta*, **89**, 215-222 (201).
- [40] <http://iaeand.iaea.or.at/formmird.html>
- [41] Blessing G., Weinreich, R., Qaim, S.M., Stöcklin, G., Production of ^{75}Br and ^{77}Br via the $^{75}\text{As}(^3\text{He},3n)^{75}\text{Br}$ and $^{75}\text{As}(\alpha,2n)^{77}\text{Br}$ reactions using Cu_6As -alloy as a high-current target material, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **33**, 333 (1982).

- [42] Blessing G., Bräutigam W., Böge H.G., Gad N., Scholten B., Qaim S.M., Internal irradiation system for excitation function measurement via the stacked-foil technique, *Appl. Radiat. Isot.*, **46**, 955 (1995).
- [43] Kuhnhenh, J., Herpers, U., Glasser, W., Michel, R., Kubik, P.W., Suter, M., Thin target cross sections for proton-induced formation of radionuclides from lead for $E_p = 71$ MeV, *Radiochim. Acta* **89**, 697–702 (2001)
- [44] Hohn, A. Kernchemische Untersuchungen zur Produktion der medizinisch relevanten längerlebigen Positronenstrahler Iod-120 und Iod-124, Berichte des Forschungszentrums Jülich, 3838, ISSN 0944-2952, Institut für Nuklearchemie Jül-3838, D 38 (Diss., Köln, Univ., 2000).
- [45] Firestone, R.B., Table of Isotopes, 8th Edition, Wiley, New York (1996).
- [46] NuDat, The Nudat Program for Nuclear Data on the Web, by R.R. Kinsey, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Version 2.5, (1996) <http://iaeand.iaea.or.at/nudat/>
- [47] Michel R., Pfeiffer F., Stück R., Measurement and hybrid model analysis of integral excitation functions for proton-induced reactions on vanadium, manganese and cobalt up to 200 MeV, *Nucl. Phys.* **A441**, 617 (1985).
- [48] Seltzer, S.M., Berger, M.J., Improved procedure for calculating the collision stopping power of elements and compounds for electrons and positrons, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **35**, 665 (1984).
- [49] Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, International Organization for Standardization, Geneva, 1993, ISBN 92-67-10188-9.
- [50] Walter, R.I., Preparation of carrier-free scandium and vanadium activities from titanium cyclotron targets, *J. Inorg. Chem.* **6**, 63 (1958).
- [51] Fritz, J.S., Abbink, J.E., Cation exchange separation of vanadium from metal ions, *Analyt. Chem.* **34**, 1080 (1962).
- [52] Janssen, A., Umland, Photometric determination of vanadium by means of pyrocatechol violet, F., *Z. anal. Chem.* **254**, 286 (1971).
- [53] Kolmeschate G. J., Elemente der 5. Nebengruppe, in W. Fresenius und G. Jander, *Handbuch der Analytischen Chemie*, Springer Verlag, Vol. 5b, 24 (1957).
- [54] Priyadarshini U., Tandon S.G., Spectrophotometric determination of vanadium(V) with N-Benzoyl-N-Phenylhydroxylamine, *Analyt. Chem.* **33**, 435 (1961).

- [55] Carobene G., Vicedomini M., Ion exchange separation of thallium (I) from lead (II), *J. Chromatog.* **33**, 566 (1968).
- [56] Miketuková V., Kohlicek, About microdetermination of thallium with rhodamine B J., *Z. anal. Chem.* **208**, 7 (1965).
- [57] Bächmann Knut, Messung radioaktiver Nuklide, *Kernchemie in Einzeldarstellungen Band 2*, Herausgegeben von K.H. Lieser, Verlag Chemie, 20-21, 1970.
- [58] Glendenin, W.F., Coryell, C.D., Atomic Energy Commission Report MDDC-19, 1946.
- [59] Blann, M., Vonach, H.K., Global test of modified precompound decay models, *Phys. Rev.* **C28**, 1475 (1983)
- [60] Dityuk, I., Konobeyev, A.Yu., Lunev, V.P., Shubin, Yu.N., New version of the advanced computer code ALICE-IPPE, Report INDC (CCP)-410, IAEA, Vienna (1998).
- [61] Udagawa, T., Tamura, T., Formulation of elastic and inelastic breakup-fusion reactions, *Phys. Rev.* **C33**, 494 (1986).
- [62] Ignatyuk, A.V., Statistical properties of excited atomic nuclei (in Russian), *Energoatomizdat, Moscow* (1983), Translated in English by the International Atomic Energy Agency (IAEA), Report INDC-233, Vienna (1985).
- [63] Ignatyuk, A.V., Istekov, K.K., Smirenkin, G.N., The role of collective effects in the systematics of nuclear level densities, *Sov. J. Nucl. Phys.* **29**(4), 450 (1979).
- [64] Blokhin, A.I., Ignatyuk, A.V., Shubin, Yu.N., Vibrational enhancement of the level density of nuclei in the iron region, *Sov. J. Nucl. Phys.*, 48(2), 232 (1988).
- [65] Ignatyuk, A.V., Weil, J.L., Raman, S., Kahane, S., Density of discrete levels in ^{116}Sn , *Phys. Rev.* **C47**, 1504 (1993).
- [66] Blann, M., Importance of the nuclear density distribution on pre-equilibrium decay, *Phys. Rev. Lett.* **28**, 757 (1972).
- [67] Iwamoto, A., Harada, K., Mechanism of cluster emission in nucleon-induced preequilibrium reactions, *Phys. Rev.* **C26**, 1821 (1982).
- [68] Sato, N., Iwamoto, A., Harada, K., Pre-equilibrium emission of light composite particles in the framework of the exciton model, *Phys. Rev.* **C28**, 1527 (1983).
- [69] Milazzo-Colli, L., Braga-Marcazzan, G.M., α -emission by pre-equilibrium processes in (n, α) reactions, *Nucl. Phys.* **A210**, 297 (1973).

- [70] Ferrero, A., Gadiolo Erba, E., Iori, I., Molho, N., Zetta, L., α -emission in proton induced reaction, *Z. Phys.* **A293**, 123 (1979).
- [71] Oblozinsky, P., Ribansky, I., Emission rate of preformed α -particles in preequilibrium decay, *Phys. Lett.* **B74**, 6 (1978).
- [72] Blann, M., A-priori preequilibrium decay models, *Nucl. Phys.* **A213**, 570 (1973).
- [73] Weisskopf, V.F., Ewing, P.H., On the yield of nuclear reactions with heavy elements, *Phys. Rev.* **57**, 472 (1940).
- [74] Faßbender, M., Shubin, Yu. N., Qaim, S.M., Formation of activation products in interactions of medium energy protons with Na, Si, P, S, Cl, Ca and Fe, *Radiochim. Acta* **84**, 59 (1999).
- [75] Faßbender, M., Shubin, Yu. N., Lunev, V.P., Qaim, S.M., Experimental studies and nuclear model calculations of the formation of radioactive products in interactions of medium energy protons with copper, zinc and brass: Estimation of collimator activation in proton therapy facilities, *Appl. Radiat. Isot.* **48**, 1221 (1997).
- [76] <http://t2.lanl.gov/data/qtool.html>
- [77] Tobailem, J., de Lassus, C.-H., Sections efficaces des reactions nucleaires induites par protons, deuteron, particules alpha, CES-N-1466(1).
- [78] Hintz, N.M., Ramsey, N.E., Excitation functions to 100 MeV, *Phys. Rev.* **88**, 19 (1952).
- [79] Davids, C.N., Laumer, H., Austin, S.M., Production of the light elements lithium, beryllium and boron by proton spallation of C-12, *Phys. Rev.* **C1**, 270 (1970).
- [80] Whithead, A.B., Foster, J.S., Activation cross sections for $^{12}\text{C}(p,pn)^{11}\text{C}$, $^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$ and $^{19}\text{F}(p,pn)^{18}\text{F}$, *Can. J. Phys.* **36**, 1276 (1958).
- [81] Valentin, L., Albouy, G., Cohen, J.P., Guskow, M., Reactions induites par des protons de 155 MeV sur des noyaux legers, *Phys. Lett.* **7**, 163 (1963).
- [82] Qaim, S.M., Tárkányi, F., Takács, S., Hermanne, A., Nortier, M., Oblozinsky, P., Scholten, B., Shubin, Yu.N., Youxiang, Z., Positron emitters, *in Charged Particle Cross-section Database for Medical Radioisotope Production: Diagnostic Radioisotopes and Monitor Reactions*, IAEA-TECDOC-1211, 234, (2001). (http://iaeand.iaea.or.at/medical/Positron_Emitters.html)
- [83] Kovács, Z., Scholten, B., Tárkányi, F., Coenen, H.H., Qaim, S.M., Cross section measurements using gas and solid targets for production of the positron-emitting

- radionuclide O-14, *Radiochim. Acta* **91**, 185 (2003).
- [84] Faßbender, M., Scholten, B., Shubin, Yu. N., Qaim, S.M., Activation cross section data for (p,x) processes of therapeutic relevance, Conference Proceedings Vol. 59, Nuclear Data for Science and Technology, G. Reffo, A. Ventura and C. Grandi (Eds.) SIF, Bologna, 1646 (1997).
- [85] Valentin L., Réactions (p,n) et (p,pn) induites á moyenne énergie sur des noyaux légers, *Nucl. Phys.* **62**, 81 (1965).
- [86] Sajjad, M., Lambrecht, R.M., Wolf, A.P., Cyclotron isotopes and radiopharmaceuticals. XXXVII. Excitation functions for the $^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$ and $^{14}\text{N}(p,pn)^{13}\text{N}$ reactions, *Radiochim. Acta* **39**, 165 (1986).
- [87] Kitwanga, S.W., Leleux, P., Lipnik, P., Vanhorenbeeck, J., Production of ^{13}N radioactive nuclei from $^{13}\text{C}(p,n)$ or $^{16}\text{O}(p,\alpha)$ reactions, *Phys. Rev.*, **C40**, 3 (1989).
- [88] Albouy, M.G., Cohen, J-P., Gusakow, M., Poffe, N., Sergolle, H., Valentin, L., Spallation de l'oxygene par des protons de 20 a 150 MeV *Phys. Lett.* **2**, 306 (1962).
- [89] Foley, K.J., Salmon, G.L., Clegg, A.B., Gamma radiation from the bombardment of ^{16}O and ^{19}F with 150 MeV protons, *Nucl. Phys.* **31**, 43 (1962).
- [90] Furukuwa, M., Ishizaki, Y., Nakano, Y., Nozaki, T., Saji, Y., Tanaka, S., Excitation function for the reaction $^{11}\text{B}(p,n)^{11}\text{C}$ up to $E_p=15$ MeV and energy levels of ^{12}C , *J. Phys. Soc. Jap.* **15**, 2167 (1960).
- [91] Maxson, D.R., 1961. $^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$ Angular Distributions at 13.5-18.1 MeV, *Phys. Rev.* **123**, 885.
- [92] Coutrakon G., Hubbard J., Johanning J., Maudsley G., Slaton T., Morton P., A performance study of the Loma Linda proton medical accelerator, *Med. Phys.* **21**, 1691 (1994).
- [93] Hess, E., Takács, S., Scholten, B., Tárkányi, F., Coenen, H.H., Qaim, S.M., Excitation function of the $^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}$ nuclear reaction from threshold up to 30 MeV, *Radiochim. Acta* **89**, 357 (2001).
- [94] ICRU (1980). International Commission on Radiation Units and Measurements, *Radiation Quantities and Units*, ICRU Report 33, Bethesda, MD, USA.
- [95] Vynkier, S., Bonnett, D.E., Jones, D.T.L., Code of practice for clinical proton dosimetry, *Radiother. Oncol.* **20**, 53 (1991).
- [96] Jones, D.T.L., Reference dosimetry for fast neutron and proton therapy,

- Radiochim. Acta **89**, 279 (2001).
- [97] Snyder W.S., Ford M.R., Warner G.G., Estimates of specific absorbed fractions for photon sources uniformly distributed in various organs of a heterogeneous phantom, MIRD Pamphlet No. 5, revised (1978).
- [98] Wissenschaftliche Tabellen Geigy, Teilband Körperflüssigkeiten, 8. Auflage, Herausgegeben von CIBA-GEIGY AG, Basel, 1977, 4. Nachdruck, 1985.
- [99] Loevinger R., Budinger T.F., Watson E.E., MIRD Primer for absorbed dose calculations (Revised). New York: The Society of Nuclear Medicine, New York, 1991.
- [100] Snyder W.S., Ford M.R., Warner G.G., Fisher H.L., Estimates of absorbed fractions for mono-energetic photon sources uniformly distributed in various organs of a heterogeneous phantom, MIRD 5, J. Nucl. Med. **10**, Suppl. 3, 5-52 (1969).
- [101] ICRU (1993). International Commission on Radiation Units and Measurements, *Radiation Quantities and Units*, ICRU Report 51, Bethesda, MD, USA.
- [102] <http://www.medrad.na.ac.za/nprots.htm>
- [103] Ebert, H., Physikalisches Taschenbuch, 5., Aufl., Vieweg, 1976.
- [104] Jaeger, R.G., Hübner, W., Dosimetrie und Strahlenschutz, Physikalisch-technische Daten und Methoden für die Praxis, 2., völlig neu bearbeitete Aufl., Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1974.
- [105] Michel, R., Bodemann, R., Busemann, H., Daunke, R., Gloris, M., Lange, H.-J., Klug, B., Krins, A., Leya, I., Lüpke, M., Neumann, S., Reinhardt, H., Schnatz-Büttgen, M., Herpers, U., Schielke, Th., Sudbrock, F., Holmqvist, B., Condé, H., Malmberg, P., Suter, M., Dittrich-Hannen, B., Kubik, P.W., Synal, H.-A., Filges, D., Cross sections for the production of residual nuclides by low- and medium-energy protons from the target elements C, N, O, Mg, Al, Si, Ca, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Sr, Y, Zr, Nb, Ba and Au, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **B129**, 153-193 (1997)
- [106] Bodemann, R., Michel, R., Rösel, R., Herpers, U., Holmqvist, B., Conde, H., Malmberg, P., Production of radionuclides from target elements ($22 < Z < 29$) by proton-induced reactions up to 100 MeV, Progress Report of Nuclear Data Research in the Federal Republic of Germany, Hrsg. S.M. Qaim, NEA/NSA(DOC(1995)10, INDC(Ger)-040, Jül-3086.

- [107] Michel, R., Stück, R., On the production of cosmogenic nuclides in meteorites by primary particles: cross sections and model calculations, *J. of Geophys. Res.* **89**, B673 (1984).
- [108] Brodzinski, R.L., Rancitelli, L.A., Cooper J.A., Wogman, N.A., High-energy proton spallation of titanium, *Phys. Rev.* **C4**, 1250 (1971).
- [109] Kuhnhen, J., Herpers, U., Glasser, W., Michel, R., Kubik, P.W., Suter, M., Thin target cross section for proton-induced production of radionuclides from lead for $E_p < 71$ MeV, *Radiochim. Acta* **89**, 697 (2001).
- [110] Lagunas-Solar, M.C., Carvacho, O.F., Nagahara, L., Mishra, A., Parks, N.J., Cyclotron Production of no-carrier-added ^{206}Bi (6,24d) and ^{205}Bi (15,31 d) as tracers for biological studies and for the development of alpha-emitting radiotherapeutic agents, *Appl. Rad. Isot.* **38**, 129 (1987).
- [111] Gloris, M., Michel, R., Sudbrock, F., Herpers, U., Malmborg, P., Holmqvist, B., Proton-induced production of residual radionuclides in lead at intermediate energies, *Nucl. Inst. Meth, Phys. Res.* **A 463**, 593 (2001).
- [112] Gloris, M., Michel, R., Herpers, U., Sudbrock, F., Filges, D., Production of residual nuclei from irradiation of thin Pb-targets with protons up to 1,6 GeV, *Nucl. Instr. Methods Pys. Res.* **B 113**, 429 (1996).

Danksagung

Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. S.M. Qaim gilt mein besonderer Dank für die Stellung des interessanten Themas. Sein Interesse an dieser Arbeit und sein fachliches Wissen waren eine unschätzbare Hilfe.

Bei Herrn Prof. Dr. H.H. Coenen möchte ich mich für die Bereitstellung aller notwendigen Arbeitsmittel und das Interesse an der vorliegenden Arbeit bedanken.

Herrn Dr. Yu. N. Shubin möchte ich für die Einführung in die Kernmodellrechnung ALICE-IPPE und seine Diskussionsbereitschaft recht herzlich danken.

Herrn S. Spellerberg danke ich für die Unterstützung bei den experimentellen Arbeiten inner- und außerhalb des Forschungszentrums.

Herrn J. Hanekom danke ich für seine freundliche Betreuung und die gemeinsamen Nachtschichten in Südafrika.

Bedanken möchte ich mich auch bei den Operateuren aller Zyklotrone, an denen ich arbeiten durfte.

Weiterhin danke ich allen Kollegen für das angenehme Arbeitsklima.

Erklärung

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

Die Bestimmungen der geltenden Promotionsordnung sind mir bekannt. Die von mir vorgelegte Dissertation ist von Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. Qaim betreut worden.

Köln, im Februar 2004

Teilpublikationen

Kettern, K., Shubin, Yu. N., Steyn, D., van der Walt, N., Coenen, H.H., Qaim, S.M., Formation of short-lived positron emitters in the interactions of protons of energies up to 200 MeV with the target elements carbon, nitrogen and oxygen, *Appl. Radiat. Isot.*, im Druck (2004).