

**FZR-234**

September 1998

*Herausgeber: Hartmut Guratzsch*

**“40 Jahre Rossendorfer Zyklotron U-120”**

eine Vortragssammlung zum Kolloquium  
am 18. September 1998

**Archiv-Ex.:**

BRD

Herausgeber:  
FORSCHUNGSZENTRUM ROSSENDORF  
Postfach 51 01 19  
D-01314 Dresden  
Telefon (03 51) 26 00  
Telefax (03 51) 2 69 04 61

Als Manuskript gedruckt  
Alle Rechte beim Herausgeber

# **“40 Jahre Rossendorfer Zyklotron U-120”**

eine Vortragssammlung zum Kolloquium

am 18. September 1998

Herausgeber: H. Guratzsch

**Das Kolloquium wird unterstützt von**

**EG&G BERTHOLD GmbH & Co. KG, Strahlungsmeßgeräte für Industrie, Wissenschaft und  
Medizin, Bad Wildbad**

**GAMMA-SERVICE Produktbestrahlung GmbH  
Leipzig, Radeberg**

# Inhaltsverzeichnis

- H. Guratzsch (FZR)  
**Das Rossendorfer Zyklotron U-120 von 1958 bis heute**
- H. Prade, L. Käubler, R. Schwengner (FZR)  
**Das Zyklotron U-120 - langjährige Basis der Rossendorfer Kernstrukturforschung**
- A. Lessel, M. Steingräber, U. Jahn (HU Berlin, Charité, Campus Berlin-Buch)  
**23 Jahre Erfahrungen beim Einsatz schneller Neutronen in der klinischen Strahlentherapie**
- G. Wagner (VKTA)  
**Isotopenproduktion mit dem Rossendorfer Zyklotron**
- J. Steinbach (FZR)  
**Das Zyklotron U-120 - Bedeutung für die Entwicklung des PET-Zentrums Rossendorf**
- G. Wunderlich, W.-G. Franke (Universitätsklinikum TU Dresden, Klinik für Nuklearmedizin)  
 **$^{211}\text{At}$ -markierte Verbindungen als potentielle Radiopharmaka**
- U. Berndtsson, T. Bäck, E.F. Aronsson, L. Jacobsson, S. Lindegren, S. Palm (Sahlgrenska Univ. Hospital, Göteborg, Schweden), G. Skarnemark (Chalmers Univ. of Technology, Göteborg, Schweden)  
 **$^{211}\text{At}$ -markierte monoklonale Antikörper zur Therapie von kleinen Tumoren und  $^{211}\text{At}$  zur Therapie von Schilddrüsentumoren**
- S. Hübener (FZR)  
**Physikochemische Charakterisierung des Seaborgium: Experimentelle Vorbereitung am U-120**
- H. Kupsch (Uni Leipzig, Fakultät für Physik und Geowissenschaften)  
**Herstellung kurzlebiger Radionuklide für Radiotraceruntersuchungen**
- S. Bludszuweit, J. Schwarte (Motoren- und Energietechnik Rostock GmbH),  
K. Eichhorn (VKTA)  
**Dünnschichtaktivierung - eine effiziente Methode für neuartige Verschleißanalysen**
- J. Dietrich  
**Erzeugung und Beschleunigung von  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen am Rossendorfer Zyklotron U-120**

# Das Rossendorfer Zyklotron U-120 von 1958 bis heute

H. Guratzsch

Forschungszentrum Rossendorf e.V., Zentralabteilung Neue Beschleuniger

Mitte der fünfziger Jahre gewann die Forschung zur friedlichen Anwendung der Kernkraft enorm an Bedeutung. In Ost und West entstanden Kernforschungszentren. In Europa wurden CERN und das VIK Dubna gegründet. In Deutschland entstehen die Forschungszentren Karlsruhe und Jülich. Am 1. Januar 1956 nimmt das Zentralinstitut für Kernphysik in Rossendorf die Arbeit auf. Reaktor und Zyklotron (Abb. 1) werden seine ersten Großgeräte. Mit der Unterzeichnung des Übergabeprotokolls beginnt am 1. August 1958 der Routinebetrieb des Rossendorfer Zyklotrons U-120. Das heutige Kolloquium ist seinem 40jährigen Betriebsjubiläum gewidmet.

Lassen Sie mich ein paar Worte zur Zyklotrongeschichte sagen. Das Zyklotronprinzip wurde 1932 von E.O. Lawrence zusammen mit S. Livingston in Berkeley (USA) nach einer von Lawrence 1930 veröffentlichten Idee realisiert. Abb. 2 zeigt das erste funktionsfähige Muster. Heute ist man in der Lage, supraleitende Zyklotrone zu bauen, die sich, wie z.B. für die Neutrontherapie, um den Patienten drehen können (Abb. 3). Unser Zyklotron wurde in den Jahren 1956 - 1958 von NIIIEFA Leningrad (heute St. Petersburg) gefertigt. Mit seinem rotations-symmetrischen Magnetfeld ist es ein "klassisches" Zyklotron mit schwacher Bahn-Fokussierung. Isochronzyklotrone, die ein azimuthal variables Magnetfeld zur starken Fokussierung haben, wurden erst später üblich. Im U-120 werden die Teilchen zwischen zwei 180°-Duanten beschleunigt (Abb. 4). Die Extraktion erfolgt mit einem elektrostatischen Deflektor. Inzwischen sind fast 70 Jahre Zyklotron-Geschichte vergangen, 40 Jahre davon haben wir selbst miterlebt - und vielleicht auch etwas mitgestaltet.

Den noch heute guten Zustand der Zyklotronanlage verdanken wir in erster Linie der umsichtigen Arbeit der Zyklotron-Mitarbeiter, aber auch dem steten Interesse der Nutzer. Der enge Kontakt zwischen Betreibern und Nutzern machte es möglich, daß Verbesserungen rechtzeitig überlegt und in den Betrieb aufgenommen werden konnten. So hat sich die Attraktivität der Maschine bis heute erhalten. Routinemäßig werden mit dem Zyklotron Protonen, Deuteronen und Alpha-Teilchen beschleunigt. Zeitweise haben wir auch  ${}^3\text{He}^{2+}$ ,  ${}^6\text{Li}^{3+}$ ,  ${}^7\text{Li}^{3+}$  sowie Neon-Ionen angeboten. Die erfolgreiche Beschleunigung dieser mehrfachgeladenen Ionen machte die Entwicklung eigener Ionenquellen und den Aufbau eines Quellenversuchsstandes erforderlich. Allerdings war die Lithiumbeschleunigung mit einem schier unzumutbaren Wartungsaufwand verbunden, da durch Lithiumniederschläge die Durchschlagsfestigkeit des Resonanzsystems rasch absank. Aufwendige Reinigungsprozeduren und leider auch erhöhter Verschleiß an den Duanten mußten in Kauf genommen werden.

Auf die vielen technischen Neuerungen, die im Laufe der Zeit entstanden sind, kann hier im einzelnen nicht eingegangen werden. Diese finden Sie als Liste "Ausgewählte Arbeiten ..." im Anhang. Ein paar "Meilensteine" aus unserer 40jährigen Betriebszeit sind es aber wert, hier vorgestellt zu werden.

Die ersten Rossendorfer Zyklotronfachleute wurden in Leningrad ausgebildet. Diese waren Herr Dr. Hiekmann, Herr Dr. Hopf, Herr Odrich und Herr Weißig. Alle weiteren Mitarbeiter wurden dann bei laufender Maschine in ihre Aufgaben eingeführt. Genutzt wurde das Rossendorfer Zyklotron zunächst für kernphysikalische Untersuchungen. Später, ab etwa 1972, trat ein deutlicher Trend zur anwendungsorientierten Forschung ein. Zu dieser Zeit wurde der Tandem in Betrieb genommen, und einige Kernphysiker wechselten zu dem neuen Beschleuniger. Die freiwerdende Strahlzeit am Zyklotron ermöglichte nun im größeren Maße die Herstellung von radioaktiven Nukliden für Medizin und Industrie sowie die Durchführung der Neutronentherapie durch die Robert-Rössle-Klinik Berlin-Buch und die Dünnschichtaktivierung für Verschleißforschungseinrichtungen. Als die Positronen-Emission-Tomographie (PET) entstand, hatte man sich auch in Rossendorf rasch dieser Entwicklung zugewandt. Für das Zyklotron bedeutete das, die anfangs auf 7 MeV beschränkte Protonenenergie auf 13 MeV zu erhöhen, um Zugang zur Erzeugung von  $^{11}\text{C}$  [ $\beta^+$ , 20,4 min] über die favorisierte Reaktion  $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$  zu erlangen. Dank der aus ReZ erhaltenen Beschleunigungskammer gelang es, die erforderliche Umrüstung der Magnetfeldshimierung praktisch bei laufender Maschine vorzunehmen. Sorgfältige Magnetfeldberechnungen, die akkurate Fertigung der Strom- und Eisenshims sowie die Entwicklung der erforderlichen Stromversorgungen im damaligen Bereich Wissenschaftlicher Gerätebau (jetzt Zentralabteilung Forschungs- und Informationstechnik) führten im Sommer 1989 zur fehlerfreien Inbetriebnahme der neuen Zyklotronkonfiguration (Abb. 5). Ab dieser Zeit stehen neben den traditionellen 7 MeV pro Nukleon für Protonen ( $\text{H}_2^+$ ), Deuteronen und  $\alpha$ -Teilchen auch die erstrebten Protonen mit 13 MeV für die PET-Entwicklung zur Verfügung. Erst im Jahre 1997 wechselte die PET-Produktion an das neu installierte Zyklotron CYCLONE 18/9 im Institut für Bioanorganische und Radiopharmazeutische Chemie des FZR.

Zum Lieferumfang des Zyklotrons gehörte damals eine Reaktionskammer von 2 m Durchmesser für kernphysikalische Experimente. Für praktische Arbeiten erwies sich diese Kammer aber als viel zu unbequem. Daher wurde 1962 die selbst entwickelte Mehrkanalstrahlausführung in Betrieb genommen (Abb. 6), wie sie auch jetzt noch mit ihren vier Strahlrohren für Experimente zur Verfügung steht. Maßgeblich waren hier beteiligt die Herren Schuster, Senf, Tischer und Weißig.

Für die verschiedensten Zyklotronanwendungen waren zur Optimierung von Strahlage und -querschnitt Meßsysteme erforderlich. Die Entwicklung von Strahl Diagnosebaugruppen reicht vom Beginn des Zyklotrons bis in die Gegenwart. Herausragend sind das Lamellentarget der Herren Dr. Hopf und Senf, der Infrarot-Strahlquerschnitts-Monitor von Dr. Büttig und die Vielkanal-Thermoelemente von Herrn Brückner.

Mit der Rekonstruktion aller Stromversorgungseinheiten konnten die Betriebssicherheit des Zyklotrons, der Bedienkomfort und vor allem die Stabilität der Strahlparameter bemerkenswert erhöht werden. Die Motorgeneratoren wurden durch leistungsfähige Halbleiterschaltungen und regelbare Transformatoren ersetzt, wodurch Stromverbrauch und Wartungsaufwand wesentlich reduziert werden konnten. Die Entwicklung von Stromversorgungen ist in Rossendorf von jeher mit dem Namen von Herrn Gläser verbunden.

Ionenquellenentwicklungen, insbesondere für Lithium und  $^3\text{He}$ , wurden vorrangig durch die Herren Odrich, Kerber, Dr. Dietrich und Naumann getragen.

Für Verbesserungen am Deflektor und der Strahlführung hat sich Herr Preusche verdient gemacht.

Herrn Brückner ist die erfolgreiche Entwicklung spezieller Targets zur Herstellung radioaktiver Nuklide zu danken.

Freiluftbestrahlungen und der Neutronenkanal für die Neutronentherapie gehen auf das Wirken von Dr. Regel und seiner Abteilung im Zentralinstitut für Molekularbiologie Berlin-Buch, Außenstelle Rossendorf, zurück.

Dünnschichtaktivierungen und die erfolgreiche Kooperation mit Verschleißforschungseinrichtungen ist die Domäne von Dr. Richter, Dr. Eichhorn, Frau Taubert und Herrn Hartmann.

Für die Erhöhung der Protonenenergie im Jahr 1989 sind besonders die Namen Dr. Tyrroff, Weißig, Preusche, Odrich, Anders, Roß, Naumann, Dr. Linnemann und Dr. Pausch zu nennen.

Ganz besonders danken möchte ich unseren Operatoren und den beiden Betriebsingenieuren, Herrn Anders und Herrn Brückner, die zu jeder Zeit umsichtig den Betrieb des Zyklotrons durchgeführt haben.

Förderlich für den Betrieb und vor allem auch für die Entwicklungsarbeiten haben sich die guten Kontakte zum Rossendorfer Tandem und die internationale Kooperation mit Rež, Dubna, Krakau, Moskau und Kiew ausgewirkt. Ganz wichtig waren auch die früher regelmäßig von den Rossendorfer Beschleunigerabteilungen durchgeführten beschleunigungstechnischen Schulen.

Zur Zeit stehen im Vordergrund der Zyklotronanwendung die Herstellung des alphastrahlenden Nuklids  $^{211}\text{At}$  für Forschungsarbeiten zur Krebstherapie, die Dünnschichtaktivierung für Verschleißuntersuchungen und die Erzeugung von Neutronen mit Hilfe des Beryllium-Targets aus der früheren Neutronentherapie. Über repräsentative Arbeiten der Zyklotronanwendung werden die Nutzer selbst berichten.

Für die Zukunft ist vorgesehen, daß die Zyklotronmannschaft den Betrieb des neuen Beschleunigers ELBE übernehmen wird, so daß zum Jahrtausendwechsel der Zyklotron-Betrieb eingestellt werden muß. Mit ELBE (Elektronenquelle mit hoher Brillanz und niedriger Emittanz) ist in Rossendorf ein supraleitender Elektronen-Linearbeschleuniger mit hoher Strahlleistung und sehr guten Strahleigenschaften im Aufbau. Wichtigste Anwendungen werden Kern- und Strahlungsphysik und der Betrieb von Freie-Elektronen-Laser zur Erzeugung von kohärenter Infrarotstrahlung variabler Wellenlänge sein. Schon jetzt nutzen wir die strahlfreie Zeit am Zyklotron, um uns an Entwicklung und Aufbau dieses neuen Beschleunigers zu beteiligen.

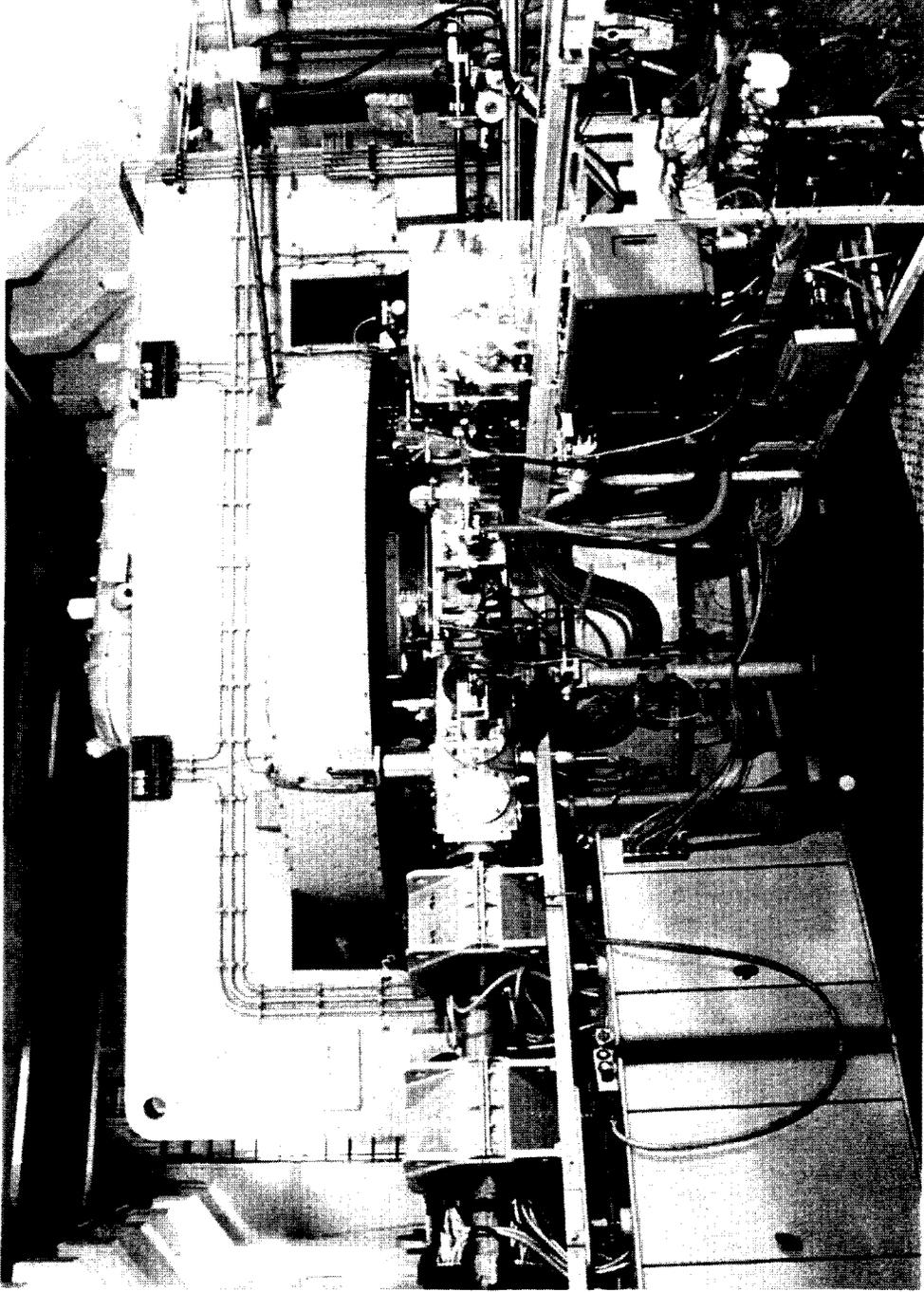


Foto: FZR

Abb. 1: Das Rossendorfer Zyklotron U-120 (1998)

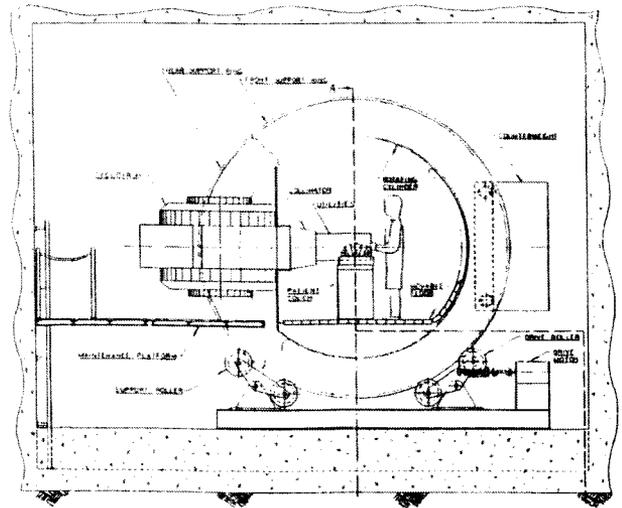


Foto: Lawrence Berkeley National Laboratory, Neg.-Nr. XBD 9711-04383.TIF

Abb. 2: Das erste Zyklotron der Welt, E.O. Lawrence (1930).  
Beschleunigungskammer, geöffnet, im Reisekoffer

Pol - $\varnothing$  = 10 cm  
 $U_{\text{Dec}}$  = 2 kV  
 $E(\text{H}_2^+) = 80 \text{ keV}$

The superconducting  
neutron therapy system  
in use at  
Harper Hospital in Detroit,  
MI (USA)



After IBA information  
"NEUTRON THERAPY 9/12"

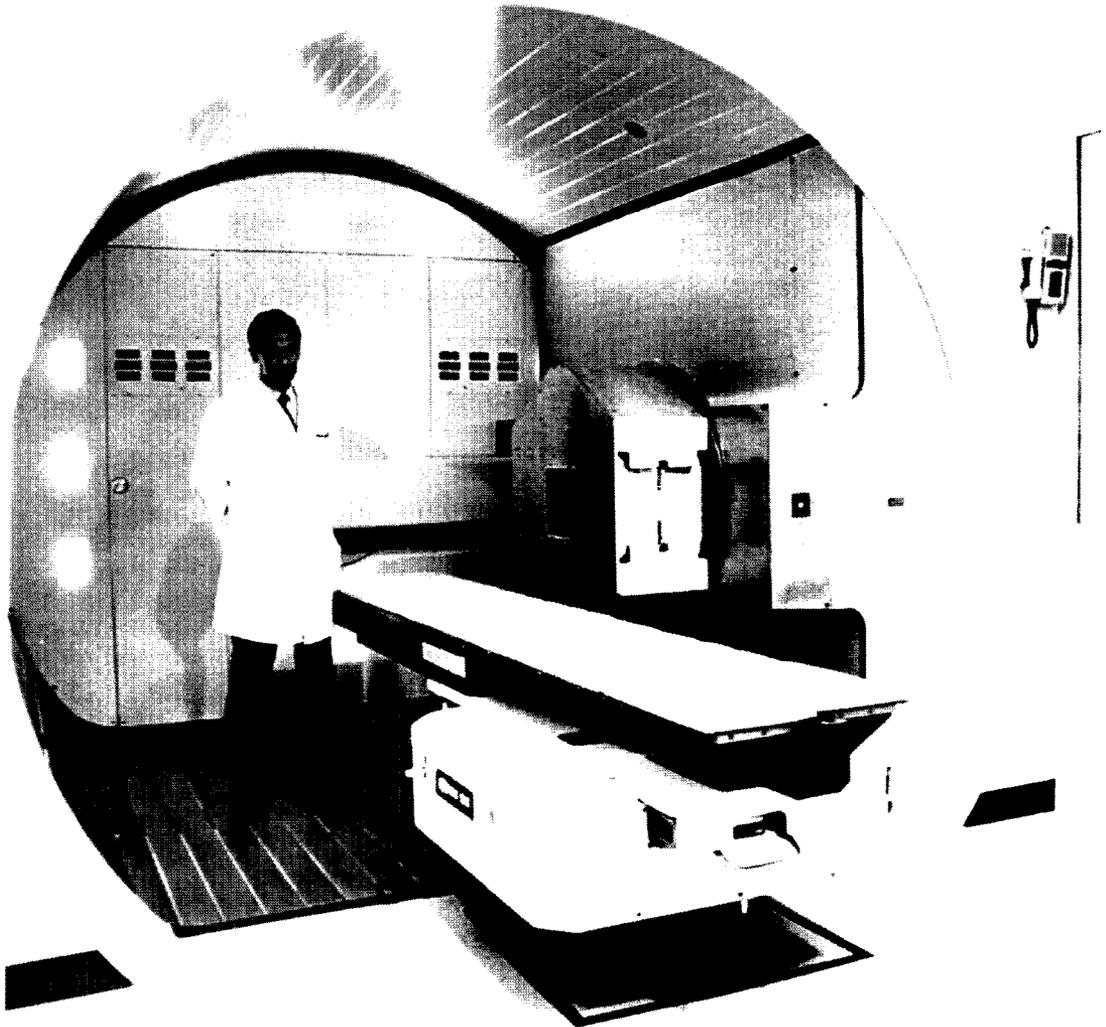


Abb. 3: Das drehbare supraleitende 50-MeV- Deuteronen-Zyklotron  
für Neutronentherapie

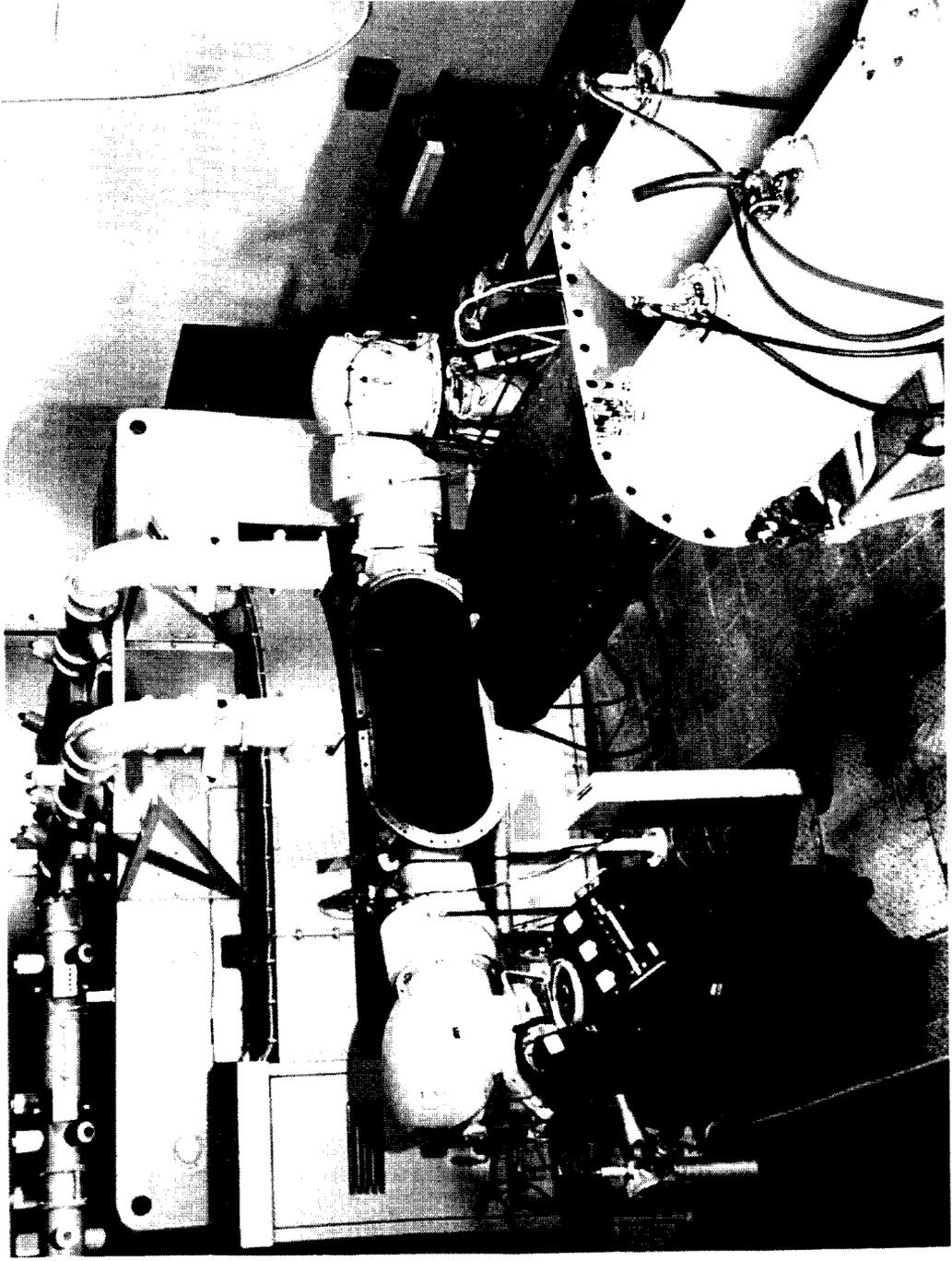


Foto: H. Kömer, Werdau, Neg.-Nr. 8779-13-74 (FZR 0096)

Abb. 4: Das Rossendorfer Zyklotron U-120 mit herausgefahrebenen Duanten (1974)

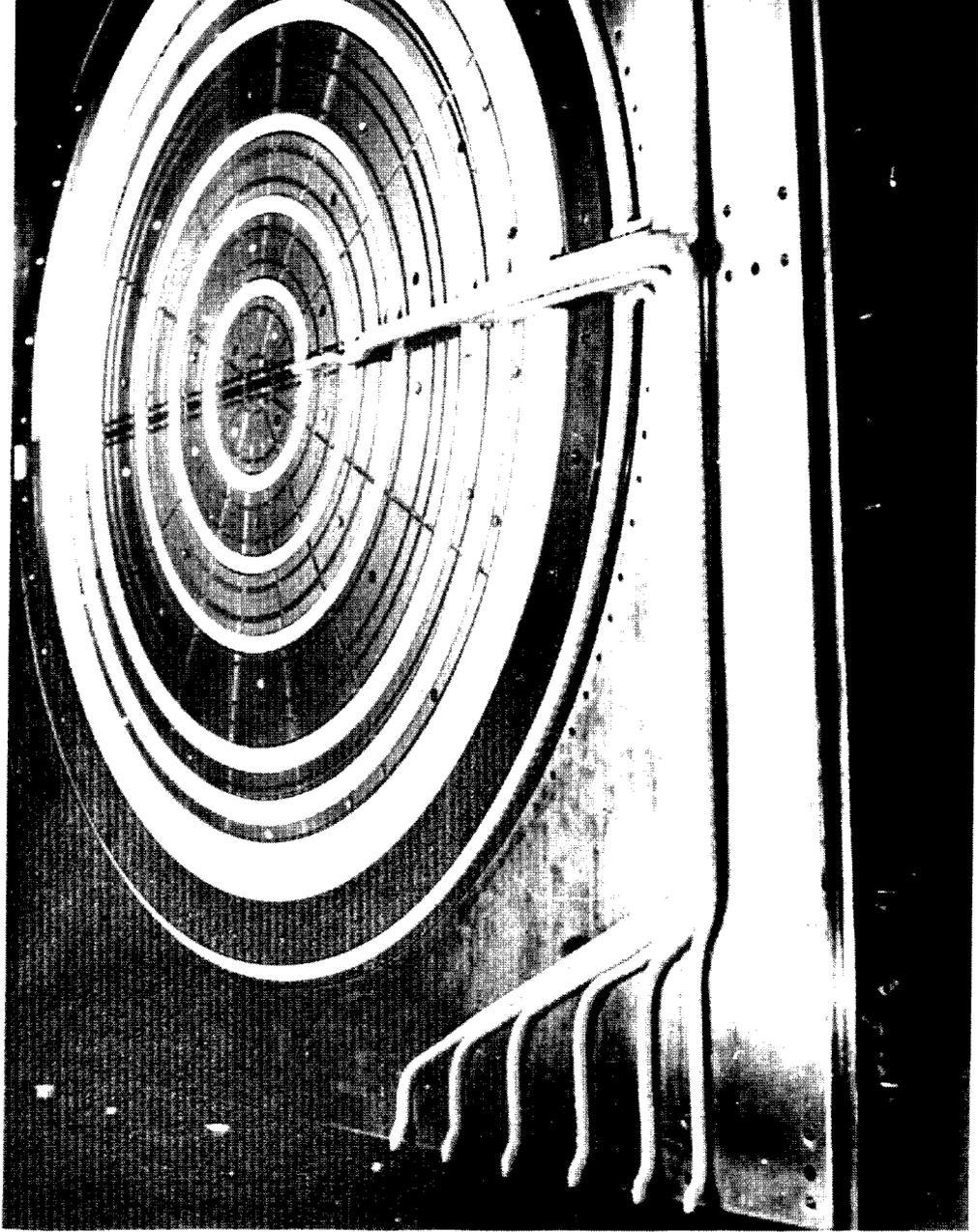


Foto: FZR

Abb. 5: Die Zusatzspulen im Rossendorfer Zyklotron U-120 (1989)

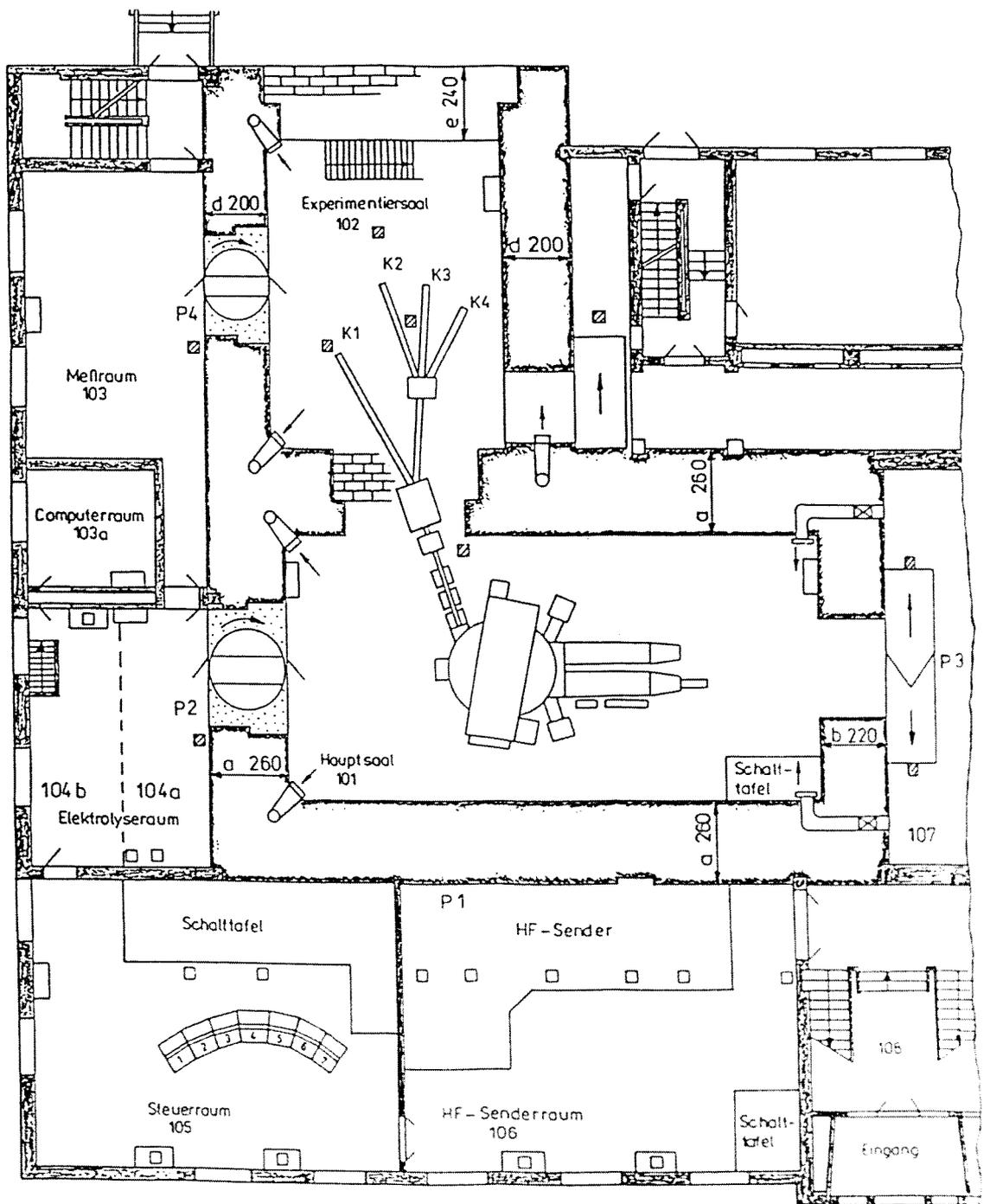


Abb. 6: Die Rossendorfer Zyklotronanlage mit MehrkanalstrahlAusführung

## **Ausgewählte Arbeiten zur Verbesserung des Betriebsregimes, der Strahlqualität oder der Anwendungen des Zyklotrons U-120**

- 1959 Stromindikator (S. Hopf, H. Schuster, G. Senf )
- 1960 Ionenbahnuntersuchungen (S. Hiekmann, H. Odrich, H. Trautmann)
- 1961 Messung der Energie und Energieverteilung des Ionenstrahls (F. Baldeweg, K. Schlott)  
Kühlaggregat für Öldampfsperren (S. Hopf, G. Senf )  
Messungen am inneren Ionenstrahl (S. Hiekmann, H. Odrich, H. Trautmann)  
Streustrahlungsuntersuchungen am Rossendorfer Zyklotron (H. Abel, W. Roßbander)
- 1962 Mehrkanalstrahlausführung (H. Schuster, G. Senf, O. Tischer, J. Weißig)  
Querschnittsmeßeinrichtung für Elektronen- und Ionenstrahlen (S. Hopf, G. Senf)  
Meßeinrichtung für Hochfrequenzleistung und Reflexionsfaktor (J. Munk)
- 1963 Verfahren zur Justierung von Quadrupollinsen (B. Anders, S. Hiekmann, H. Odrich)  
Targettechnik für inneren Strahl (B. Anders, S. Hiekmann, H. Odrich, H. Trautmann)  
Schutz- und Trainiereinrichtung für den Deflektor (H. Schuster)
- 1964 Frequenz- und Symmetriereeleinrichtung (G. Kerber, H. Odrich)
- 1965 Spezieller Wobbelsender (M. Seifert)
- 1966 Rekonstruktion der Regelkreise, Stabilisierung der Kühlwassertemperatur ,  
des Katodenstromes und der Hochspannung (M. Borkenhagen, D. Ernst, G. Kerber)
- 1967 Samplingvorsatz (F. Gabriel)
- 1968 Duantenlagemeßeinrichtung (M. Borkenhagen, G. Kerber)  
Temperaturmessung am Deflektormesser (J. Weißig)
- 1969 Rückwirkungsfreie Messung der Form einer bewegten Ladungswolke (H. Odrich)
- 1970 Messung der Ionenphase (G. Kerber, H. Odrich)
- 1971 Stabilisierungseinrichtungen für Stromversorgungen (W. Gläser)  
Aufbau der Bestrahlungsanlage für Neutronentherapie (H. Abel, K. Eichhorn,  
K. Regel, R. Roßbander, R. Zimmermann)

- 1972 Antriebe für Trimmer (R. Brückner, H. Odrich)  
Targethalter (B. Anders, W. Naumann)
- 1973 Magnetfeldmessung (B. Hartmann, S. Hiekmann, G. Kerber, H. Odrich)  
Einsatz eines Prozeßrechners am Zyklotron (B. Hartmann, S. Hiekmann, M. Borkenhagen)
- 1974 Shimierung des Magnetfeldes (G. Kerber, H. Odrich)
- 1975 Beschleunigung von  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen (G. Kerber, H. Odrich, J. Weißig)
- 1976 Meßwerterfassung und Aufarbeitung für die rechnergestützte Prozeßführung des Zyklotronbetriebes (M. Borkenhagen, B. Hartmann, S. Hiekmann, G. Hofmann, J. Linnemann, G. Pietzsch, K. Thierauf)
- 1977 Impulsbogenspannungsquelle (H. Büttig, P. Hartmann, H. Merker)  
Beschleunigung von  $^6\text{Li}^{3+}$ -Ionen (J. Dietrich, G. Kerber, W. Naumann, H. Odrich)  
Fernbedienbare Bestrahlungsanlage zur Produktion von  $^{67}\text{Ga}$  und  $^{211}\text{At}$  (G.-J. Beyer, R. Brückner, F. Jäpel, H. Odrich, G. Schulze, G. Umlauf, J. Weißig)
- 1978 Ionenquellenversuchsstand (H. Büttig, J. Dietrich, H. Merker, H. Odrich, S. Preusche, H. Roß, H. Weißig)  
Teilchenbahnberechnungen (J. Dietrich, H. Merker)
- 1979 Universelle Ionenquelle (F. Jäpel, G. Kerber, W. Naumann, H. Odrich)  
Digitaler Strahlstromintegrator (H. Büttig)
- 1980 Infrarotthermografie am ausgeführten Ionenstrahl (H. Büttig)  
Berechnung der Ionenbahnen im Deflektor (S. Preusche, J. Slotta)
- 1981 Targetentwicklung für die Isotopenproduktion (R. Brückner, G. Umlauf)  
Magnetstromversorgungen mit Regeleinrichtung (W. Gläser)
- 1982 Messung der Targettemperaturverteilung (R. Brückner)  
Modulator für den Hochfrequenzgenerator (H. Büttig, M. Zschernig)
- 1983 Neujustierung der Strahlführung (B. Anders, H. Guratzsch, H. Odrich)  
Rekonstruktion Deflektor (S. Preusche, G. Umlauf)
- 1984 Sputterionenquelle für Li (J. Dietrich, G. Kerber, W. Naumann, H. Odrich)  
Bestrahlunseinrichtung für Gastargets (R. Brückner, G. Umlauf)
- 1985 Beschleunigung von  $^{20}\text{Ne}^{3+}$  und  $^{20}\text{Ne}^{4+}$ -Ionen (H. Guratzsch, H. Odrich)  
Tripletsystem zur Strahlfokussierung (H. Guratzsch)

- 1986 Ionenquelle mit indirekter Heizung für Li (G. Kerber, H. Odrich)
- 1987 - 1989 Vorbereitung und Umbau des U-120 für Protonenbeschleunigung  
(B. Hartmann, P. Hartmann, W. Gläser, H. Guratzsch, J. Linnemann, H. Odrich,  
G. Pausch, S. Preusche, H. Ross, H. Taubert, H. Tyrroff, J. Weißig)
- 1990 Einsatz eines neuen Wärmetauschers (J. Weißig)
- 1991 Targetwechsellanlage für PET-Target (R. Brückner, E. Lösel, J. Steinbach, R. Wenzel,  
U. Wünsche)
- 1993 Modernisierung des Bestrahlungsplatzes für Dünnschichtaktivierungen  
(B. Eppendorfer, B. Hartmann, W. Neumann, H. Taubert)
- 1994 Verbesserte Deflektorspannungsversorgung (H. Büttig, R. Wenzel)
- 1995 Rekonstruktion der Bogenspannungsversorgung (H. Büttig, R. Wenzel)
- 1996 Verbesserungen am Vakuumsystem (B. Eppendorfer, W. Naumann, R. Wenzel)  
Aufbau eines modernen Nuklidmeßplatzes mit Ge-Spektrometer (B. Hartmann,  
H. Taubert)
- 1997 Targettechnologie zur Aktivierung gepreßter Substanzen (R. Brückner, H. Guratzsch,  
H.-W. Thümmel)

# Das Zyklotron U-120 – langjährige Basis der Rossendorfer Kernstrukturforschung

H. PRADE, L. KÄUBLER, R. SCHWENGER

*Institut für Kern- und Hadronenphysik, Forschungszentrum Rossendorf*

## 1 Einleitung

Im August 1958 wurde das Zyklotron U-120 als Basisgerät für die kernphysikalische Grundlagenforschung in Betrieb genommen. **Der engagierten und kompetenten Betriebsmannschaft des Zyklotrons ist es zu danken, daß es diesem Anspruch bis zum Ende der achtziger Jahre gerecht werden konnte und noch heute seinen Dienst für anwendungsorientierte Aufgaben verrichtet.**

Die Ergebnisse von zwei Jahrzehnten kernphysikalischer Experimente wurden in „20 Jahre Rossendorfer Zyklotron“ [1] zusammenfassend dargestellt. In den sechziger Jahren konzentrierten sich die kernphysikalischen Arbeiten auf Kernreaktions-Experimente an Wenig-Nukleonen-Systemen [2, 3, 4] und auf Kernstrukturuntersuchungen auf der Basis von Zerfallsspektroskopie [5].

Seit Anfang der siebziger Jahre bis 1990 wurde das Zyklotron durch die Kernphysik ausschließlich für Kernstrukturuntersuchungen genutzt. In dieser Periode erhielten die Kernspektroskopiegruppen pro Jahr eine Strahlzeit von 1200 Stunden, d.h. etwa 30% der verfügbaren Strahlzeit bzw. etwa eine Woche pro Monat rund um die Uhr, und das meist **bei stabilen Strahlbedingungen.**

Kernstrukturuntersuchungen verfolgen das Ziel, die Anregungsschemata und Kernniveaueigenschaften von Atomkernen möglichst umfassend experimentell zu bestimmen und durch Vergleich mit den Vorhersagen von Kernstrukturmodellen den Aufbau des Vielteilchensystems Atomkern und die Wechselwirkung zwischen seinen Bestandteilen besser zu verstehen. Hauptziel der Arbeiten am Zyklotron U-120 waren Beiträge zur Aufklärung kollektiver Bewegungsformen und deren kompliziertem Wechselspiel mit der Einteilchenbewegung in mittelschweren Atomkernen.

Die enorme Verbesserung der Energieauflösung der Gamma-Dektoren von einigen zehn keV bei Szintillationsdetektoren auf einige keV bei Ge(Li)- oder Reinstgermanium-Dektoren in den sechziger Jahren ermöglichte den Übergang von der Zerfallsspektroskopie zur Spektroskopie am Teilchenstrahl. Die Rossendorfer Kernspektroskopie erkannte diesen Trend frühzeitig und gehörte 1967 mit zu den ersten Arbeitsgruppen, die die In-Beam-Spektroskopie zur Untersuchung der Struktur von Atomkernen nutzte, nun mit dem zusätzlichen Freiheitsgrad des hohen Drehimpulses. Dabei konnte sich die Kernspektroskopie im ZfK auf folgende Grundlagen stützen:

- Moderne zweidimensionale langsame und schnelle [6] Koinzidenz- und Vielkanalmesstechnik auf der Basis der 2K-Amplituden-Digital-Konverter und der 2K-Ferritkernspeicher [7] aus dem Bereich Technik des ZfK Rossendorf.
- Neue Gamma-Messtechnik, d.h. Einsatz von Ge(Li)-Detektoren aus Řež (ČSSR).
- Etablierte Meßmethoden zur Bestimmung von Energie, Drehimpuls, Parität und Lebensdauer eines Kernniveaus. [8]
- Enge Zusammenarbeit mit den Kernstrukturtheoretikern in Rossendorf und Dubna.
- Relativ moderne Rechentechnik in Rossendorf und Dresden für Datenanalyse und theoretische Rechnungen.

- **Stabiler Teilchenstrahl von Protonen, Deuteronen und besonders 27 MeV Alphateilchen mit variabler Zeitstruktur am Zyklotron U-120 und die Weiterentwicklungen zur Beschleunigung von  $^3\text{He}$ - und  $^{6,7}\text{Li}$ -Ionen.**

Im folgenden sollen **Ergebnisse der Rossendorfer Kernspektroskopie, die bis zum Ende der siebziger Jahre am Zyklotron U-120 erzielt wurden**, kurz skizziert und Ergebnisse von 1980 bis 1990 detaillierter dargestellt werden.

## 2 Ergebnisse der In-Beam-Spektroskopie bis 1978

Die Resultate der In-Beam-Experimente am Zyklotron U-120 bis 1978 sind in [8] ausführlich dargestellt und sollen hier nur kurz zusammengefaßt werden.

- In Rossendorf wurde die **HF- $\gamma$ -Methode** [9, 10, 11] entwickelt, ein Meßverfahren zur Bestimmung von Kernniveaulbensdauern im ns-Bereich auf der Grundlage des im MHz-Bereich gepulsten Teilchenstrahls.
- Bei der Untersuchung von Rotationsbanden in ungeraden Kernen des Massenbereiches  $A = 150 - 190$  konnte der Einfluß der Coriolis-Wechselwirkung bei der Rotations-Teilchen-Kopplung auf Anregungsenergien und Übergangswahrscheinlichkeiten nachgewiesen werden [12, 13, 14]. Im ZfK Rossendorf wurden erstmalig Kopplungseffekte zwischen Zuständen gefunden, bei denen der Unterschied der Drehimpulsprojektion  $K$  größer als 1 ist.
- In deformierten Kernen wurde der Einfluß der Quadrupol- und Hexadekapoldeformation [15] und der Quasiteilchen-Phononen-Wechselwirkung [16] auf Übergangswahrscheinlichkeiten untersucht.
- In Kernen im Übergangsbereich zwischen stabiler Deformation und sphärischer Kernform wurde die Koexistenz verschiedener Kernformen [17] und eine Abhängigkeit der Kernform von der Protonen- und Neutronenzahl gefunden (z.B. [18, 19]).
- Auf der Basis eines von Rossendorfer Kerntheoretikern ausgearbeiteten Rumpf-Quasiteilchen-Kopplungs-Modells [20] wurden die in den Zyklotron-Experimenten beobachteten verschiedenen Bandenstrukturen in ungeraden Übergangskernen als Folge der Änderung des Teilchen-Loch-Charakters der Bandenköpfe erklärt [21].
- Hochspinzustände in Kernen nahe magischer Zahlen konnten durch Mehrteilchenanregungen im Protonen- oder/und Neutronensystem [22] beschrieben werden.

## 3 Weiterentwicklungen am Zyklotron für die Kernspektroskopie

Die Rossendorfer Kernspektroskopie verfolgte immer das Ziel, Kerneigenschaften systematisch über größere Massengebiete zu studieren. Deshalb bestand der Wunsch der experimentellen Kernstrukturphysiker, das Spektrum der beschleunigten Teilchen am Zyklotron U-120 zu erweitern, um Atomkerne zu möglichst hohen Drehimpulsen anzuregen.

1974 konnten nach Umshimierung des Magnetfeldes, Erhöhung der Spannungsfestigkeit einzelner Anlagenteile und dem Aufbau einer He-Rückgewinnungsanlage erstmals  **$^3\text{He}^{2+}$  Ionen auf 32 MeV beschleunigt** werden [23]. Später gab es jährlich wegen der umfangreichen Umbauten eine mehrwöchige ununterbrochene  $^3\text{He}$ -Strahlzeit.

Für die **Beschleunigung von dreifach geladenen  $^{6,7}\text{Li}$  Ionen**, einer wegen des hohen Aufwandes eher selten beschleunigten Teilchenart, mußte eine neue Ionenquelle entwickelt werden

[23, 24]. 1977 konnten erstmals  $^7\text{Li}$ -, später auch  $^6\text{Li}$ -Ionen beschleunigt werden, die in den folgenden Jahren in mehrwöchentlichen Strahlzeiten öfter benutzt wurden. Diese Meßperioden stellten an alle Beteiligten hohe Anforderungen, besonders aber an die Zyklotronmannschaft. Während der Bestrahlung mußte das Zyklotron mit besonderer Konzentration betrieben werden. Außerdem war ein anschließendes gründliches Auswaschen der Lithiumrückstände in der Beschleunigungskammer und auf den Duanten erforderlich.

## 4 Ergebnisse der Kernstrukturuntersuchungen 1978-1990

### 4.1 Methodische Entwicklungen

Für die kernspektroskopischen Experimente wurde ein schnelles Datenerfassungssystem auf der Basis eines Rechners vom Typ Robotron KRS 4201 aufgebaut [25]. Damit war es möglich, sowohl mehrparametrische Meßdaten als Einzelereignisse auf Magnetband oder Festplatte zu speichern als auch Matrizen on-line in speziellen Speichermodulen aufzubauen.

In Ergänzung der bereits für die Kernspektroskopie verfügbaren Meßmethoden wurden weitere Meßanordnungen aufgebaut bzw. Verfahren entwickelt:

#### 4.1.1 Bestimmung von Lebensdauern im ps-Bereich mit Hilfe des Doppler-Effekts

Zur Bestimmung von Lebensdauern auf der Grundlage des Doppler-Effekts werden zwei Methoden angewendet: die „Doppler-Shift-Attenuation“ (DSA) Methode, bei der die Kerne in einem dicken Target gestoppt werden, und die „Recoil-Distance-Doppler-Shift“ (RDDS) Methode, bei der die Kerne ein dünnes Target verlassen und nach einer Strecke freien Fluges in einem „Auffänger“ gestoppt werden. Mit beiden Methoden wird die Lebensdauer des emittierenden Niveaus aus dem Vergleich von experimentellen mit simulierten Formen von Doppler-verschobenen „Gammalinien“ bestimmt. Hierzu wurde innerhalb der Rossendorfer Spektroskopiegruppe von G. Winter ein Computerprogramm entwickelt, das die Häufigkeitsverteilung der Geschwindigkeit der Endkerne als Funktion der Zeit mit Hilfe der Monte-Carlo-Methode aus einer großen Anzahl von Endkern-Trajektorien berechnet [26]. Die Anwendung dieser Methode stellte einen großen Fortschritt gegenüber vorher verwendeten ungenauen analytischen Näherungen dar. Auf der Grundlage dieser Häufigkeitsverteilung werden Doppler-verschobene Linienformen von Gammaübergängen für verschiedene Lebensdauern berechnet und mit experimentellen Linienformen verglichen. Ein Beispiel einer solchen Analyse ist in Abb. 1 gezeigt. Die Doppler-Shift Methoden zur Bestimmung von Lebensdauern wurden in zahlreichen Experimenten am Zyklotron U-120 angewendet und sind eine wichtige Grundlage für neuartige Erkenntnisse über die Kernstruktur (siehe Abschnitte 4.2.1 und 4.2.2).

#### 4.1.2 Anordnung zur Messung magnetischer Momente

Für Kernniveaus, deren Lebensdauer im ns-Bereich und darüber liegt, kann das magnetische Kerndipolmoment durch zeitdifferentielle Messung der gestörten Winkelverteilung bestimmt werden. Voraussetzung ist ein entsprechend gepulster Teilchenstrahl. Aus dem magnetischen Moment läßt sich direkt die Nukleonenkonfiguration des betreffenden Kernzustandes ableiten, eine wichtige Grundlage für umfassendere Kernmodellbetrachtungen. Deshalb wurde eine entsprechende Meßanordnung auf der Basis eines konventionellen Elektromagneten für maximal 2.5 T aufgebaut (Abb. 2), mit der für eine Vielzahl von Kernzuständen der Kern- $g$ -Faktor gemessen wurde [27].

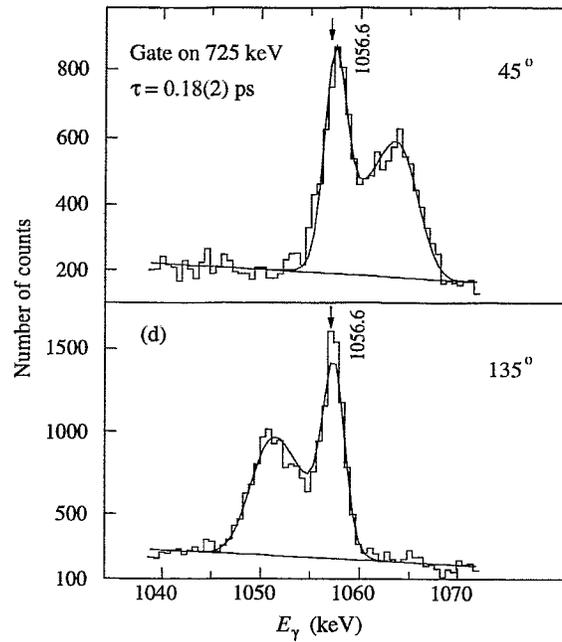


Abb. 1: Linienformanalyse mit Hilfe der „Doppler-Shift-Attenuation“-Methode. Die angegebene Lebensdauer wurde aus einer gemeinsamen Anpassung berechneter an experimentelle Linienformen bei den Komplementärwinkeln  $45^\circ$  und  $135^\circ$  bestimmt.

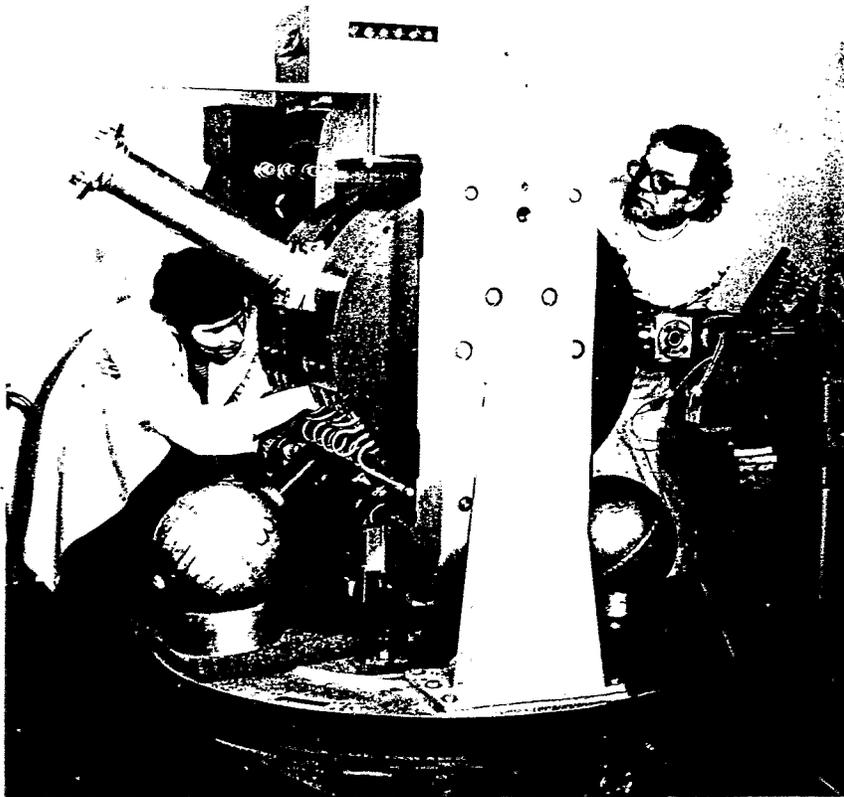


Abb. 2: Anordnung zur Messung magnetischer Momente.

### 4.1.3 Teilchen-Gamma-Koinzidenzordnung

In Compoundkernreaktionen wird eine Vielzahl von Endkernen erzeugt. Oftmals interessieren die Kerne, die nur mit schwachen Ausbeuten erzeugt werden. Die Gammaübergänge in diesen Kernen sind häufig von denen aus stärkeren Reaktionskanälen überdeckt. Durch die Messung der Gammastrahlung in Koinzidenz mit geladenen Teilchen kann eine Auswahl von Endkernen getroffen werden. Für Teilchen-Gamma-Koinzidenzmessungen am Rossendorfer Zyklotron wurde eine Detektoranordnung aufgebaut, die zwei Silizium-Detektoren zur Messung geladener Teilchen enthielt [28]. Sie ist schematisch in Abb. 3 gezeigt.

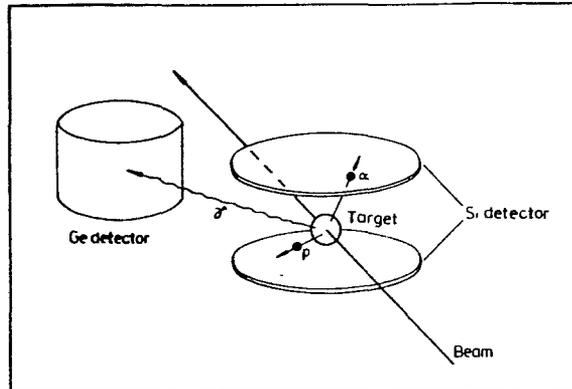


Abb. 3: Schematische Darstellung der Anordnung von zwei Siliziumdetektoren zum Nachweis geladener Teilchen und einem Germanium-Detektor.

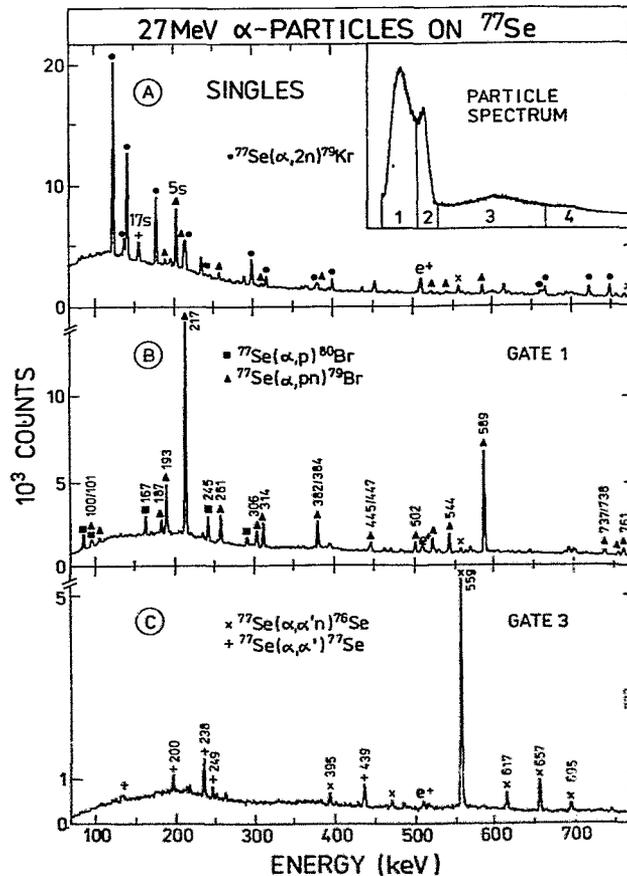


Abb. 4: Vergleich von Gammaspektren ohne Koinzidenzbedingung (A) und in Koinzidenz mit Protonen (B) bzw. Alphateilchen (C).

Die Silizium-Detektoren mit Durchmessern von 42 mm und Dicken von 0.3 mm wurden im ZfK Rossendorf hergestellt. Sie waren oberhalb und unterhalb des Targets im Abstand von 20 mm zum Target angeordnet. Dieser Detektoraufbau wurde in mehreren Untersuchungen von Kernen im Massengebiet um  $A = 80$  genutzt und war sehr wertvoll für die Identifizierung und Auswertung von Gammaübergängen z.B. in den Kernen  $^{79}\text{Br}$  [29] und  $^{81,82}\text{Br}$  [30]. Er war auch Ausgangspunkt für verbesserte Anordnungen von Silizium-Detektoren, die in Messungen an externen Beschleunigern benutzt wurden. Beispiele für Gammaskpektren, die in Koinzidenz mit den beschriebenen Silizium-Detektoren gemessen wurden, sind in Abb. 4 gezeigt.

#### 4.1.4 Gastargetsystem für Krypton und Xenon

Für die Untersuchung spezieller  $N = 82$  [31] und  $N = 50$  Kerne wurde ein Gastargetsystem für Kr und Xe aufgebaut [32] (Abb. 5). Durch Gasrückgewinnung mit flüssigem Stickstoff konnten dabei die Verluste an teuren angereicherten Gasen sehr gering gehalten werden.

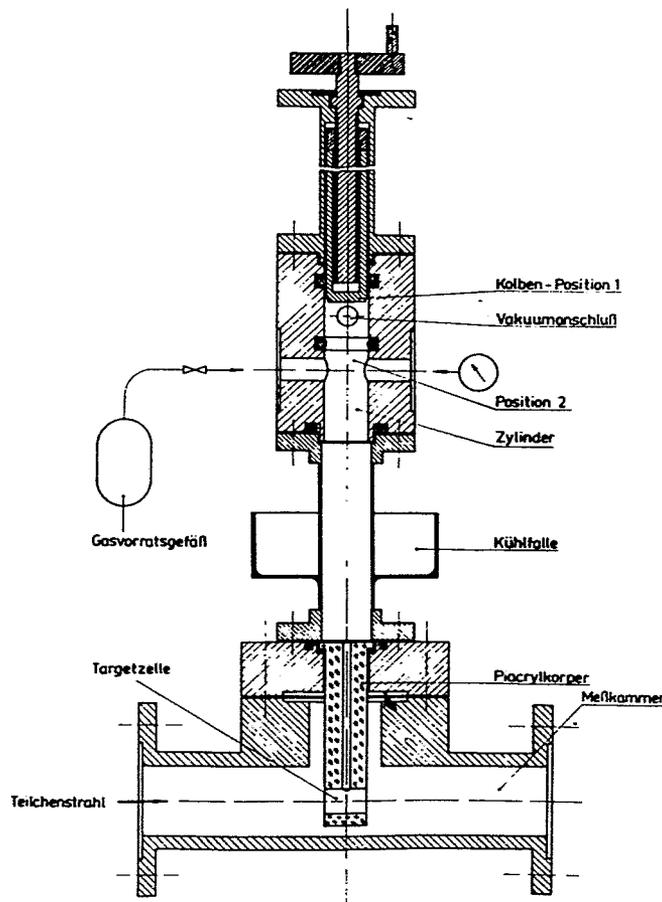


Abb. 5: Schnitt durch das Gastargetsystem.

## 4.2 Ergebnisse der Kernstrukturforschung

### 4.2.1 Schnelle magnetische Dipolübergänge in Kernen um $A = 80$

Bei der Untersuchung des Kerns  $^{81}\text{Kr}$  wurde eine Strukturänderung beim  $21/2^+$ -Zustand beobachtet. Bei diesem Zustand endet die Bande von elektrischen Quadrupolübergängen und wird durch eine Folge von magnetischen Dipolübergängen abgelöst. Aus den DSA-

Lebensdauermessungen folgte, daß diese Übergänge Stärken bis zu etwa  $2 \mu_N^2$  haben. Solche großen Übergangsstärken waren bis dahin unbekannt und wurden durch die Rossendorfer Gruppe erstmals beobachtet [33, 34]. In einer Zusammenarbeit zwischen der Spektroskopiegruppe und Kernstrukturtheoretikern in Rossendorf wurde ein semiklassisches Modell entwickelt, das diese großen Übergangsstärken auf der Grundlage der Kopplung der Spins ungepaarter Protonen und Neutronen in speziellen Bahnen beschreibt, bei der sich die magnetischen Dipolmomente konstruktiv überlagern. Dies war ein neues Konzept, das auch Eingang in ein später entwickeltes Modell zur Beschreibung von Rotationsbanden mit starken magnetischen Dipolübergängen, dem „Tilted-Axis-Cranking-Modell“ [35], gefunden hat. Mehrteilchenanregungen, die zu starken magnetischen Dipolübergängen führen, wurden dann am Rossendorfer Zyklotron systematisch untersucht. Sie konnten auch in den Kernen  $^{83}\text{Kr}$  [36] und  $^{79}\text{Kr}$  [37] gefunden werden. Im Kern  $^{79}\text{Br}$  wurde erstmalig eine Folge starker magnetischer Dipolübergänge zwischen Zuständen negativer Parität beobachtet [29].

#### 4.2.2 Mehrteilchenanregungen in Kernen nahe des Schalenabschlusses bei $N = 50$

Die Untersuchung von Mehrteilchenanregungen im Massengebiet um  $A = 80$  wurde von deformierten Kernen auf nahezu sphärische Kerne ausgedehnt, in denen diese Anregungen dominieren. Auf der Basis von Experimenten am Rossendorfer Zyklotron wurde erstmals ein isomerer Viertelchenzustand im  $^{84}\text{Kr}$  gefunden, dessen Lebensdauer und  $g$ -Faktor ebenfalls bestimmt werden konnten [38, 39]. Diese experimentellen Ergebnisse ermöglichten einen detaillierten Vergleich mit theoretischen Vorhersagen. Isomere Mehrteilchenzustände in Kernen mit  $N = 48 - 50$  wurden in weiteren Experimenten, die vor allem den  $^7\text{Li}$ -Strahl des Rossendorfer Zyklotrons nutzten, systematisch untersucht [40]. Im magischen Kern  $^{89}\text{Y}$  ( $N = 50$ ) wurden Zustände bei Energien um 8 MeV gefunden, deren Eigenschaften auf einen Aufbruch des  $N = 50$  „Cores“ hindeuten [41]. Diese Interpretation konnte später in Schalenmodellrechnungen mit einem großen Konfigurationsraum bestätigt werden [42].

#### 4.2.3 Vielteilchenanregungen in $N=82$ Kernen und ihre Schalenmodellbeschreibung

Entsprechend den experimentellen Möglichkeiten unseres Zyklotrons wurden die 7 halbmagischen Kerne mit 82 Neutronen  $^{138}\text{Ba}$  bis  $^{144}\text{Sm}$  systematisch untersucht (z.B. [43, 44, 45]). Auf der Basis des Rossendorfer Schalenmodell-Programms RACK [46] konnten die beobachteten Zustände bis ca. 5 MeV Anregungsenergie als Vielteilchen-Protonenanregungen mikroskopisch erklärt werden. Zur Beschreibung der experimentell beobachteten Zustände mit negativer Parität wurde auf der Basis des Schalenmodells ein Core-Teilchen Kopplungsmodell entwickelt [47]. Mit diesem Modell konnte gezeigt werden, daß sich die Zustände positiver Parität nicht wie vermutet durch Kopplung eines Protons an den Rumpfkern beschreiben lassen und daß die in Rechnungen schwierig zu beschreibenden  $E1$  Übergänge durch Anregungen in die nächsthöhere Hauptschale quantitativ verstanden werden können.

#### 4.2.4 Niveauschemata ungerader Zinn-Kerne und ihre erstmalige Schalenmodellbeschreibung

Anfang der achtziger Jahre wurden systematische experimentelle Untersuchungen der halbmagischen ( $Z=50$ ) Zinnkerne initiiert [48, 49]. **Auf der Grundlage von Reaktionen mit  $^3\text{He}$  und  $^6\text{Li}$  konnten in  $^{111}\text{Sn}$  die theoretisch erwarteten Zustände positiver Parität gefunden werden.** Um die experimentellen Daten zu beschreiben, wurden Parameter für Schalenmodell-Rechnungen in Zinn-Kernen bestimmt und erstmalig Schalenmodellrechnungen mit Konfigurationsmischung für Zinn-Kerne durchgeführt, in denen die experimentellen Zustände als Neutronen-Vielteilchenanregungen gut beschrieben werden. In  $^{113}\text{Sn}$  konnte erstmalig in einem leichten

Zinn-Kern ein Neutronen  $h_{11/2}^2 g_{9/2}^{-1}$  Isomer gefunden werden. Heute sind die Zinn-Kerne wegen der Vielfalt der in ihnen beobachteten Anregungsphänomene Gegenstand zahlreicher Experimente mit modernen Spektrometern.

#### 4.2.5 Weitere Ergebnisse der Kernspektroskopie am Rossendorfer Zyklotron

In den Abschnitten 4.2.1 bis 4.2.4 konnten nur einige Ergebnisse aufgeführt werden. Im folgenden sollen weitere Resultate kurz genannt werden:

- Nachweis konfigurationsabhängiger Dreiaxialität in Kernen um  $^{105}\text{Ag}$  [50].
- Kollektive Anregungen in den Übergangskernen  $^{117,119,121}\text{Te}$  [51].
- Konzept der  $Z = 50$  und  $N = 82$  Quasispiegelkerne [48].
- Deformationsabhängigkeit magnetischer Momente in Übergangskernen [52].
- Temperaturabhängigkeit des Paramagnetismus von Ce-Ionen in BaO [53].
- Zwei-Quasiteilchen-Anregungen und Kollektivität in den Übergangskernen  $^{104,106,108}\text{Cd}$  [54] und  $^{102,104,106}\text{Pd}$  [55].
- Untersuchung von Bandenkreuzungsphänomenen und der Wechselwirkung zwischen der Grundzustandsbande und der „S-Bande“ in Kernen um  $A = 80$  [56, 57, 58, 59, 60, 61].

## 5 Unser Dank an die Zyklotronmannschaft

Im Namen der Experimentatoren aus der Kernphysik möchten die Autoren allen Kollegen, die an der Weiterentwicklung, dem Betrieb und der Wartung des Zyklotrons U-120 beteiligt waren, herzlichen Dank sagen für die langjährige gute Zusammenarbeit. Auf dieser Basis konnten in Rossendorf wertvolle, international beachtete Beiträge zu aktuellen Fragen der kernphysikalischen Grundlagenforschung geleistet werden. Hervorzuheben ist die ständige Bereitschaft der Zyklotronmannschaft, unsere Wünsche zur Verbesserung der Experimentierbedingungen, zur Optimierung von Strahleigenschaften, zur Veränderung der Zeitstruktur des Strahls und zur Erweiterung des Spektrums der beschleunigten Teilchen aufzugreifen und in hoher Qualität umzusetzen. Durch die Kompetenz und das Engagement der Zyklotronmannschaft war nahezu stets ein stabiler und zuverlässiger Betrieb des U-120 gewährleistet, von dem wir Experimentatoren dankbar profitiert haben.

## 6 Schlußbemerkungen

Im Ergebnis von zwei Jahrzehnten In-Beam-Kernstrukturforschung am Zyklotron U-120 entstanden ca. 200 Veröffentlichungen in referierten internationalen Fachzeitschriften. Die Gruppen der Rossendorfer Kernspektroskopie arbeiteten dabei mit Kollegen aus Budapest, Debrecen, Dubna, Kiev, Köln, Leningrad, Řež, Riga, Sofia, Stockholm, Uppsala und Zagreb zusammen. Die Forschungsergebnisse der Rossendorfer Kernspektroskopie trugen wesentlich dazu bei, daß im Ergebnis der Evaluierung des ZfK Rossendorf durch den deutschen Wissenschaftsrat 1991 die Gründung eines Institutes für Kern- und Hadronenphysik im FZR empfohlen wurde.

Im Streben nach der Untersuchung von extremen Kernzuständen, exotischen Kernen weitab von der Stabilitätslinie oder sehr komplexen kollektiven Kernzuständen findet Kernstrukturphysik heute vorwiegend an Schwerionenbeschleunigern, Beschleunigern mit radioaktiven Strahlen oder Elektronenbeschleunigern statt. **Mit der Errichtung des Elektronenbeschleunigers ELBE wird die Kernstrukturphysik wieder eine experimentelle Basis im FZ Rossendorf finden.**

## Literatur

- [1] R. Weibrecht (Herausgeber), 20 Jahre Rossendorfer Zyklotron, Report ZfK-363 (1978) 1
- [2] B. Kühn, Arbeiten am Rossendorfer Zyklotron über den Mechanismus von Kernreaktionen (1963 - 1972), in [1], S. 38
- [3] K. Möller, Messung der Reaktionen  $^2\text{H}(p,p)d$  und  $^1\text{H}(d,2p)n$  am Zyklotron U-120, in [1], S. 43
- [4] R. Grötzschel, Bestimmung der Neutron-Neutron-Streulänge aus der Reaktion  $^3\text{H}(d,n^3\text{He})n$ , in [1], S. 46
- [5] F. Sary und L. Funke, Einsatz des Zyklotrons U-120 für zerfallsspektroskopische und Isomerie-Untersuchungen, in [1], S. 48
- [6] F. Gabriel, H. Koepernik and K. Schöps, Nucl. Instr. Meth. 103 (1972) 501
- [7] M. Kahlenbach, Ein universeller Datenspeicher für kernphysikalische Messungen, Dissertation TU Dresden (1963)
- [8] L. Funke und F. Sary, Kernspektroskopie am Strahl des Rossendorfer Zyklotrons, in [1], S. 53
- [9] W. Andrejtscheff, F. Dubbers, P. Manfraß and K.-D. Schilling, Isomeric E1 Transitions with  $\Delta K=0$  in  $^{171,173}\text{Lu}$ , Nucl. Phys. A190 (1972) 489
- [10] P. Manfraß, W. Andrejtscheff, F. Dubbers, K.-D. Schilling und W. Seidel, Fortschritte bei der Messung von Nanosekunden-Isomeren am Teilchenstrahl, Report ZfK-255 (1973) 1
- [11] K.-D. Schilling, L. Käubler, F. Sary and W. Andrejtscheff, Electromagnetic Transitions in Some Odd-Proton Deformed Nuclei, Nucl. Phys. A265 (1976) 58
- [12] G. Winter, L. Funke, K.H. Kaun, P. Kemnitz and H. Sodan, Rotational States and Rotation-particle Coupling in  $^{155}\text{Tb}$  and  $^{157}\text{Tb}$ , Nucl. Phys. A176 (1971) 609
- [13] L. Funke, K.H. Kaun, P. Kemnitz, H. Sodan and G. Winter, Rotational Bands and Fast E1 Transitions in  $^{163}\text{Ho}$ , Nucl. Phys. A190 (1972) 576
- [14] P. Kemnitz, L. Funke, K.H. Kaun, H. Sodan and G. Winter, Evidence for Mixing of Rotational States Differing by  $\Delta K=2,3$  and 4, Phys. Lett. 39B (1972) 179
- [15] K.D. Schilling, W. Andrejtscheff and G. Winter, Hexadecapole Deformations and E1 Transitions in Odd-A Ho and Tm Nuclei, J. Phys. G3 (1977) 1255
- [16] W. Andrejtscheff and P. Manfraß, Evidence for the Quasiparticle-Phonon-Interaction in Odd-mass Deformed Nuclei, Phys. Lett. 55B (1975) 159
- [17] P. Kemnitz, L. Funke, H. Sodan, E. Will and G. Winter, High-spin States in  $^{187,189}\text{Ir}$ : Coexistence of Strong-coupling, Rotation-alignment and Weak-coupling, Nucl. Phys. A245 (1975) 212
- [18] U. Hagemann, H.-J. Keller and H.F. Brinckmann, Collective Excitations in the  $^{123,125}\text{I}$  Nuclei, Nucl. Phys. A289 (1977) 292
- [19] W.D. Fromm, H.F. Brinckmann, F. Dönau, C. Heiser, F.R. May, V.V. Pashkevich and H. Rotter, Level Structure in  $^{117}\text{Sb}$  Investigated in the Decay of the Isomeric Three-quasiparticle State, Nucl. Phys. A243 (1975) 9

- [20] F. Dönau and S. Frauendorf, Description of Odd Transitional Nuclei in Terms of Core-quasiparticle Models, Phys. Lett. 71B (1977) 263
- [21] U. Hagemann and F. Dönau, Pairing Factor and Band Structures in Odd-A Pd Nuclei, Phys. Lett. 59B (1975) 321
- [22] G. Winter, F. Dönau, L. Funke, P. Kemnitz and E. Will, Proton-neutron Excitations in the High-spin States of  $^{95}\text{Tc}$ , Nucl. Phys. A291 (1977) 401
- [23] G. Kerber und H. Odrich, Beschleunigung weiterer Ionensorten, in [1], S. 27
- [24] J. Dietrich, G. Kerber, W. Naumann und H. Odrich, Die Beschleunigung von Li-Ionen mit dem Zyklotron U-120, Jahresbericht 1977, ZfK-350 (1978) 185
- [25] W.D. Fromm, On-line Registration of Multi-parameter Events, Annual Report 1988, ZfK-667 (1989) 164
- [26] G. Winter, The determination of nuclear picosecond lifetimes by means of the Doppler effect, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 214 (1983) 537
- [27] L. Käubler, H. Prade, L. Schneider, H.-F. Brinckmann und F. Stary, Kernstrukturuntersuchungen mit Hilfe magnetischer Momente angeregter Kernzustände, Report ZfK-455 (1981) 1
- [28] R. Schwengner, Mehrteilchenanregungen und kollektive Bewegung in den Übergangskernen  $^{78}\text{Se}$ ,  $^{79}\text{Kr}$ ,  $^{79}\text{Br}$  und  $^{81}\text{Br}$ , Dissertation, Akademie der Wissenschaften der DDR, 1990
- [29] R. Schwengner, J. Döring, L. Funke, H. Rotter, G. Winter, A. Johnson, A. Nilsson, High-spin states and band structures in  $^{79}\text{Br}$ , Nucl. Phys. A 486 (1988) 43
- [30] L. Funke, J. Döring, P. Kemnitz, P. Ojeda, R. Schwengner, E. Will, G. Winter, A. Johnson, L. Hildingsson, Th. Lindblad, Yrast States in  $^{81}\text{Br}$  and  $^{82}\text{Br}$ , Zeitschr. Phys. A 324 (1986) 127
- [31] H. Prade, W. Enghardt, I. Dioszegi, L. Käubler, H.-J. Keller, F. Stary and G. Winter, In-Beam Investigations and Structure Studies of Multiparticle Excitations in the  $N=82,83$  Nuclei  $^{138,139}\text{Ba}$ , Nucl. Phys. A472 (1987) 381
- [32] D. Walzog, H. Prade, J. Fiedler und F. Stary, Gastarget für die Kernspektroskopie am Teilchenstrahl, Jahresbericht 1981, ZfK-488 (1982) 208
- [33] L. Funke, F. Dönau, J. Döring, P. Kemnitz, E. Will, G. Winter, L. Hildingsson, A. Johnson and Th. Lindblad, Shape change and fast M1 transitions in  $^{81}\text{Kr}$ , Phys. Lett. 120B (1983) 301
- [34] L. Funke, J. Döring, P. Kemnitz, E. Will, G. Winter, A. Johnson, L. Hildingsson and Th. Lindblad, Three-quasiparticle excitations in  $^{81}\text{Kr}$ , Nucl. Phys. A455 (1986) 206
- [35] S. Frauendorf, Tilted cranking, Nucl. Phys. A 557 (1993) 259c
- [36] P. Kemnitz, J. Döring, L. Funke, G. Winter, L.H. Hildingsson, D. Jerrestam, A. Johnson and Th. Lindblad, Evidence for shape coexistence from few-quasiparticle excitations in  $^{83}\text{Kr}$ , Nucl. Phys. A456 (1986) 89
- [37] R. Schwengner, J. Döring, L. Funke, G. Winter, A. Johnson and W. Nazarewicz, Three-quasiparticle excitations in  $^{79}\text{Kr}$ , Nucl. Phys. A509 (1990) 550

- [38] H. Rotter, J. Döring, L. Funke, L. Käubler, P. Kemnitz, P. Kleinwächter, L.O. Norlin, H. Prade, R. Schwengner, G. Winter, A.E. Sobov, A.P. Grinberg, I.Kh. Lemberg, A.S. Mishin, L.A. Rassadin, I.N. Chugunov, Evidence for a Four-Quasiparticle Isomer in  $^{84}\text{Kr}$ , Phys. Lett. 163B (1985) 323
- [39] H. Rotter, J. Döring, L. Funke, L. Käubler, H. Prade, R. Schwengner, G. Winter, A.E. Zobov, A.P. Grinberg, I.Kh. Lemberg, A.S. Mishin, L.A. Rassadin, I.N. Chugunov, A.D. Efimov, K.I. Erokhina, V.I. Isakov, L.O. Norlin, U. Rosengard, Yrast Spectroscopy of the  $N=48$  Nucleus  $^{84}\text{Kr}$ , Nucl. Phys. A 514 (1990) 401
- [40] G. Winter, J. Döring, L. Funke, L. Käubler, R. Schwengner, H. Prade, New Isomers in  $^{83}\text{Br}$ ,  $^{85}\text{Rb}$ ,  $^{85}\text{Kr}$  and  $^{86}\text{Kr}$ , Z. Phys. A 332 (1989) 33
- [41] L. Funke, G. Winter, J. Döring, L. Käubler, H. Prade, R. Schwengner, E. Will, Ch. Protophristov, W. Andrejtscheff, L.G. Kostova, P.O. Lipas, R. Wirowski, Neutron-core excitations in the  $N=50$  nucleus  $^{89}\text{Y}$ , Nucl. Phys. A 541 (1992) 241
- [42] J. Reif, G. Winter, R. Schwengner, H. Prade, L. Käubler, Break-up of the  $N=50$  core in  $^{89}_{39}\text{Y}_{50}$ , Nucl. Phys. A 587 (1995) 449
- [43] H. Prade, W. Enghardt, H.U. Jäger, L. Käubler, H.-J. Keller and F. Stary, In-Beam Study and Structure of the  $N=82$  Nucleus  $^{141}\text{Pr}$ , Nucl. Phys. A370 (1981) 47
- [44] W. Enghardt, L. Käubler, H. Prade, H.-J. Keller and F. Stary, In-Beam Study of Multiparticle Excitations in the Semi-magic Nucleus  $^{140}\text{Ce}$ , Nucl. Phys. A449 (1986) 417
- [45] L. Käubler, W. Enghardt, H. Prade, P. Carle, L.O. Norlin, K.-G. Rensfelt and U. Rosengard, The Magnetic Moment of the  $10^+$  Isomer in  $^{140}\text{Ce}$  and E1 Transitions in  $N=82$  Isotones Caused by Outer Subshell Configurations, Z. Phys. A329 (1988) 143
- [46] H.-U. Jäger, ALGOL-programm System RACK for Shell Model Calculations using the Second Quantization Method, Report ZfK-145 (1968) 1
- [47] W. Enghardt and H.U. Jäger, Proton  $1h_{11/2}$  Excitations in Odd-mass  $N=82$  Nuclei, Nucl. Phys. A438 (1985) 141
- [48] H. Prade, W. Enghardt, W.D. Fromm, H.U. Jäger, L. Käubler, H.-J. Keller, L.K. Kostov, F. Stary, G. Winkler and L. Westerberg, New Positive-parity States and the Shell-Model Description of  $^{111}\text{Sn}$ , Nucl. Phys. A425 (1984) 317
- [49] L. Käubler, J. Döring, H. Prade, I.N. Vishnevski, M.J. Kirichenko, Yu.N. Lobach, I.P. Tkachuk, V.V. Trishin, M.F. Kudojarov, E.V. Kuzmin, A.A. Pasternak, J. Blomqvist and L. Kostova, Evidence for a Neutron  $h^2_{11/2}g^{-1}_{9/2}$  Isomer in  $^{113}\text{Sn}$ , Annual Report 1989, ZfK-731 (1990) 22
- [50] H.-J. Keller, S. Frauendorf, U. Hagemann, L. Käubler, H. Prade and F. Stary, In-Beam Study of  $^{105}\text{Ag}$  and Configuration-dependent Triaxiality in Nuclei around  $A=105$ , Nucl. Phys. A444 (1985) 261
- [51] U. Hagemann, H.-J. Keller, Ch. Protophristow and F. Stary, Collective Excitations in the  $^{117,119,121}\text{Te}$  Nuclei, Nucl. Phys. A329 (1979) 157
- [52] L. Käubler, H. Prade, F. Dönau, U. Hagemann, F. Stary and K.-G. Rensfelt. Deformation Dependence of Magnetic Moments in the Odd Transitional Nuclei  $^{117-125}\text{Te}$ , Z. Phys. A299 (1981) 251

- [53] L. Käubler, W. Enghardt, H. Prade, F. Stary, P. Carle, L.O. Norlin, K.-G. Rensfelt and U. Rosengard, The Magnetic Moment of the  $10^+$  Isomer in  $^{140}\text{Ce}$  and Temperature Dependence of the Paramagnetism for Ce ions in BaO, *Hyperfine Interactions* 34 (1987) 381
- [54] W. Andrejtscheff, L.K. Kostov, H. Rotter, H. Prade, F. Stary, M. Seuba, N. Tsoupas, Z.Z. Ding and P. Raghavan, Two-quasiparticle Excitations and Collectivity in the Weakly Deformed Transitional Isotopes  $^{104,106,108}\text{Cd}$ , *Nucl. Phys. A*437 (1985) 167
- [55] W. Andrejtscheff, L.K. Kostov, L.G. Kostova, P. Petkov, H. Rotter, W.D. Fromm, H. Prade and F. Stary, Two-quasiproton and Two-quasineutron Excitations in the Transitional Nuclei  $^{102,104,106}\text{Pd}$ , *Nucl. Phys. A*448 (1986) 301
- [56] L. Funke, J. Döring, F. Dubbers, P. Kemnitz, E. Will, G. Winter, V.G. Kiptilij, M.F. Kudojarov, I.Kh. Lemberg, A.A. Pasternak, A.S. Mishin, L. Hildingsson, A. Johnson and Th. Lindblad, In-beam study of  $^{80}\text{Kr}$ ; Quasiparticle excitations in nuclei around mass 80, *Nucl. Phys. A*355 (1981) 228
- [57] L. Funke, J. Döring, S. Frauendorf, P. Kemnitz, F.R. May, E. Will and G. Winter, On the interaction of the s-band with the ground state and gamma band in nuclei around mass 80, *Phys. Lett.* 108B (1982) 243
- [58] P. Kemnitz, J. Döring, L. Funke, E. Will and G. Winter, Fast  $\Delta I = 0$  M1 transitions in the band crossing region, *Phys. Lett.* 125B (1983) 119
- [59] P. Kemnitz, P. Ojeda, J. Döring, L. Funke, L.K. Kostov, H. Rotter, E. Will and G. Winter, Collectivity and the role of two-proton and two-neutron excitations in  $^{82}\text{Kr}$ , *Nucl. Phys. A*425 (1984) 493
- [60] G. Winter, F. Dubbers, J. Döring, L. Funke, P. Kemnitz, E. Will, D.S. Andreev, K.I. Erochina, I.Kh. Lemberg, A.A. Pasternak, L.A. Rassadin and I.N. Chugunov, On the irregularities in the band structures of  $^{78}\text{Kr}$ , *J. Phys. G: Nucl. Phys.* 11 (1985) 277
- [61] R. Schwengner, G. Winter, J. Döring, L. Funke, P. Kemnitz, E. Will, A.E. Sobov, A.D. Efimov, M.F. Kudojarov, I.Kh. Lemberg, A.S. Mishin, A.A. Pasternak, L.A. Rassadin and I.N. Chugunov, Collective and two-particle excitations in  $^{78}\text{Se}$ , *Z. Phys. A* 326 (1987) 287

# 23 Jahre Erfahrungen beim Einsatz schneller Neutronen in der klinischen Strahlentherapie

A. Lessel, M. Steingraber, U. Jahn  
Humboldt-Universität Berlin, Charité, Campus Berlin-Buch

In der Hoffnung, Fortschritte im Kampf gegen den Krebs zu erzielen, beschäftigen sich seit mehr als 20 Jahren viele Zentren in der Welt mit dem Einsatz schneller Neutronen in der klinischen Strahlentherapie. Der erste Einsatz 1932 von Stone war bei noch fehlender Kenntnis der biologischen Wirkung und noch mangelhafter Dosimetrie fehlgeschlagen.

1969 kam es nach biologischen Versuchen und Weiterentwicklung der Dosimetrie in London erneut zur klinischen Anwendung der schnellen Neutronen. Bei über 15 000 Patienten, die bisher auf der Welt mit schnellen Neutronen behandelt wurden, davon über 7000 Patienten in Europa, erfüllten sich die hochgesteckten Erwartungen, die an die Neutronentherapie geknüpft waren, nicht gänzlich. Von insgesamt 25 Zentren auf der Welt haben 8 Einrichtungen wegen gerätetechnischer Mängel bzw. fehlender Ersatzröhren die Neutronentherapie eingestellt. Auch wir beendeten 1995 die Therapie, da wegen der räumlichen Entfernung der regelmäßige Einsatz nicht möglich war und wegen der geringen Eindringtiefe der schnellen Neutronen mit einer mittleren Energie von  $0,5 \text{ MeV}$  nur für sehr oberflächlich gelegene Tumoren ein wirklicher Vorteil bei wenig Nebenwirkungen erzielt werden konnte.

Vor Beginn des Einsatzes der schnellen Neutronen in der klinischen Behandlung stellten wir uns die Frage: Warum ist der Einsatz dieser Strahlenart bei der Behandlung bösartiger Tumoren erfolgversprechend?

Bekannt waren:

- herabgesetzter Sauerstoffverstärkungsfaktor
- herabgesetztes Reparaturvermögen
- Unabhängigkeit vom Zellteilungszyklus
- Höhere Relative Biologische Wirksamkeit  
RBW im klinischen Dosisbereich  
3,0 für Frühreaktionen  
4,0 für Spätreaktionen

Zur Klärung stellten wir uns folgende Aufgaben zur klinischen Einführung der schnellen Neutronen in die Tumorthherapie:

- Untersuchung der Reaktion (Tumorvernichtung) im Autopsie- oder Operationspräparat (makroskopisch und histologisch) und Vergleich mit eigenen Kontrollserien, die mit Normalstrahlung behandelt wurden
- Untersuchung der Rückbildung besonders strahlenresistenter Tumortypen klinisch und, wenn möglich, histologisch
- Untersuchung der Rezidivquoten nach postoperativer prophylaktischer Neutronenbestrahlung bei Tumoren, die zur Rezidivierung neigen und Vergleich mit Literaturangaben über Rezidivprophylaxe mit Normalstrahlung
- Prüfung bestimmter mitbestrahlter Normalgewebe auf verstärkte Früh- und Spätveränderungen (klinisch, funktionell)

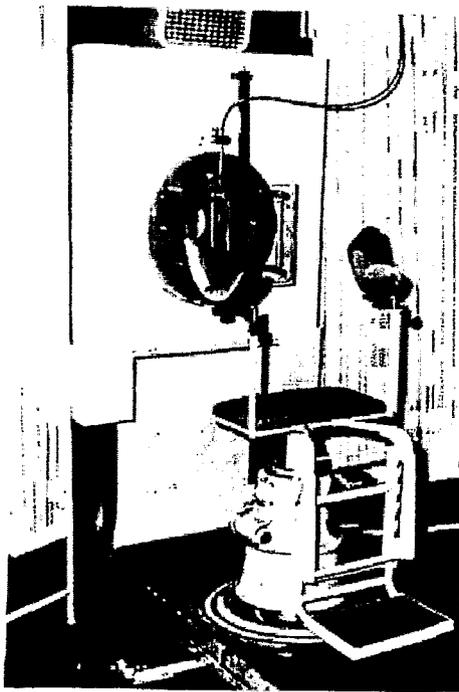


Abbildung 1:  
Bestrahlungsanordnung im Sitzen  
auf einem umgebauten Dentalstuhl

vernichtungsrate gegenüber der Photonentherapie, aber für die Überlebenszeit zeigte sich kein Benefit [2]. Die Ergebnisse stimmen mit den Resultaten der anderen Zentren gut überein, obgleich eine exakte Vergleichbarkeit nicht gegeben ist. Die Neutronenquellen haben keine übereinstimmende Energie, somit ist der RBW-Faktor nicht identisch und ein Dosisvergleich nicht gestattet. Übereinstimmend kann dennoch postuliert werden, daß die Neutronentherapie nur einen Vorteil bringen kann, wenn der RBW-Faktor des Tumors höher ist als der des umgebenden Normalgewebes. Dies ist für langsam wachsende, gut differenzierte Tumore und Tumore mit großem hypoxischen Anteil anzunehmen und konnte auch klinisch bestätigt werden. Retrospektiv zeigen die klinischen Serien Ergebnisse, wie sie nach den ersten klinischen radiobiologischen Studien von Battermann [1] erwartet wurden.

Er fand bei der Bestrahlung pulmonaler Metastasen verschiedener Tumore den höchsten RBW-Faktor für die Parotistumore und Sarkome. Im gleichen Jahr 1981 veröffentlichte unsere Arbeitsgruppe unter Eichhorn [3] ihre Hypothese über die für die

Wir begannen 1972 im April zunächst mit der Bestrahlung von Bronchial- und Oesophaguskarzinomen. Zur Vermeidung von größeren Nebenwirkungen an der Lunge erfolgte die Bestrahlung im Sitzen auf einem eingebauten Dentalstuhl (Abb. 1).

Als die Ergebnisse des ersten Pilotversuchs vorlagen und wir die schnellen Neutronen nur noch für oberflächlich gelegene Tumore einsetzten, führten wir die Bestrahlung liegend durch, wo für die relativ langen Bestrahlungszeiten auch eine bessere und reproduzierbare Lagerung möglich wurde. Dank der guten Zusammenarbeit mit dem Rossendorfer Zyklotronteam wurden auch die Bedingungen für die Patienten erheblich verbessert. (Abb. 2)

In unserer Einrichtung wurden vom April 1972 bis zum Mai 1995 insgesamt 1035 Patienten der Neutronentherapie zugeführt. Tabelle 1 zeigt die Tumorentitäten und Patientenzahlen für die gesamten Bestrahlungsserien. Bei den Patienten, die während der Pilotphase bestrahlt wurden, wie wir schon zum Festkolloquium 20 Jahre Zyklotron berichten konnten, fanden wir beim Bronchialkarzinom, Oesophagus- und Magentumor anhand der Autopsie- und Operationspräparate im Vergleich zu historischen Kontrollserien und beim Bronchialkarzinom auch in einer randomisierten Studie eine signifikant höhere Tumor-

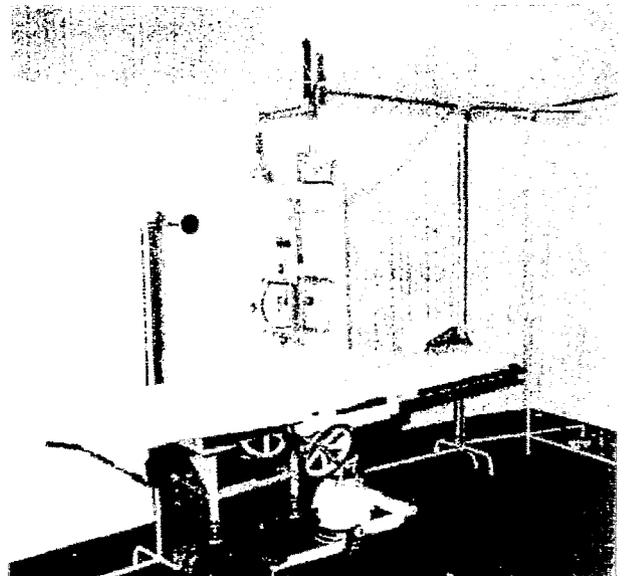


Abbildung 2: Anordnung von  
Bestrahlungstisch und Abstandshalter  
einschließlich Meßvorrichtung

Strahlentherapie relevante Wirkung der schnellen

Tabelle 1: Neutronentherapie in Berlin-Buch / Rossendorf  
 April 1972 - Mai 1995  
 1274 Serien, 1035 Patienten

Lokalisation	Patienten
Weichteil - Sa.	422
Bronchial - Ca.	272
Chondro - Sa.	70
Oesophagus - Ca.	52
Magen - Ca.	50
Parotis - Tu.	45
HNO - Tu.	37
Melanome	18
Nieren - Tu.	15
Pleuramesotheliome	14
Blasen - Ca.	8
Osteo - Sa.	6
Andere	26
Total	1035

Nicht nur die stärkere Wirkung auf hypoxische Tumoranteile, sondern die gleich starke Wirkung auf sich teilende und nicht proliferierende Zellen definiert den Unterschied zur Photonenstrahlung, die überwiegend auf Zellen in zwei definierten Zellteilungsphasen einwirkt, während in der Ruhephase Reparaturvorgänge ablaufen können. Ausschlaggebend für die Wirkungsunterschiede der Photonen- und schnellen Neutronenstrahlen und für die Höhe der RBW-Faktoren sind Unterschiede in der Proliferationskinetik der Gewebe und in der Repair-Fähigkeit der Zellen. Somit postulierten wir, daß der RBW-Faktor um so höher sein muß, je kleiner der proliferierende Anteil eines Tumors, bzw. eines Gewebes ist, das heißt die schnellen Neutronen sind um so wirksamer, je größer die G<sub>0</sub>-Population ist.

Diese Hypothese wurde inzwischen durch die klinischen Ergebnisse bestätigt und von allen Arbeitsgruppen, insbesondere in den USA anerkannt [3]. Dementsprechend wurden die klinischen Untersuchungen in allen Zentren umgestellt. Zur intensiven Therapie wurden Patienten mit Parotistumoren, Prostatakarzinomen, Weichteil- und Chondro-Sarkomen, Adenokarzinomen der Lunge und Pancoastumoren in die Studien einbezogen. Die Indikation zur palliativen Bestrahlung umfaßt zusätzlich Rezidive von Weichteilsarkomen oder inoperable Sarkome, osteogene Sarkome, Rektumkarzinomrezidive und ausgedehnte, lokal metastasierte Mammakarzinome sowie Melanome [4].

Wir haben seit 1984 ausschließlich oberflächlich gelegene Weichteilsarkome und Parotistumore bestrahlt. Von den insgesamt 422 Weichteilsarkomen konnten wir 232 Fälle, die wir mindestens ein Jahr überblicken, auswerten. Tabelle 2 zeigt die lokale Kontrolle aufgeschlüsselt nach den einzelnen Tumorentitäten. Diese Ergebnisse stimmen mit den Resultaten der anderen Zentren und mit Literaturangaben auch nach Photonentherapie mit über 60 Gy sehr gut überein. Es muß dabei besonders hervorgehoben werden, daß unsere Ergebnisse mit sehr niedrigen Dosen (6-10 Gy schnelle Neutro-

nen am Tumor, bzw. im ehemaligen Tumorbereich) erzielt wurden. Für das Gesamtkollektiv ergab sich ein rezidivfreies Überleben nach 10 Jahren von 62% bei einer 5-Jahres-rezidivfreien Überlebensrate von 66%.

Tabelle 2: Neutronentherapie  
Lokale Kontrolle - Weichteilsarkome

Histologischer Subtyp	Lokale Kontrolle
Liposarkom	45/65 = 69%
Fibrosarkom	31/45 = 69%
MFH	18/30 = 60%
Rhabdomyosarkom	10/15 = 67%
Leiomyosarkom	6/12 = 50%
synoviales Sarkom	5/12 = 42%
Dermatofibrosarcoma protuberans	8/9 = 89%
Neurosarkom	4/10 = 40 %
Aggressive Fibromatose	12/15 = 80%
Andere	13/19 = 80%
Gesamt	152/232 = 66%

Von den insgesamt 47 bestrahlten Parotistumoren konnten ein Jahr nach Bestrahlung, alle ausgewertet werden. die Verteilung der histologischen Typen und die Stadieneinteilung zeigt die Tabelle 3. Bei 20 Patienten handelte es sich um die Therapie von Rezidiven, 8 x war es das erste Rezidiv, 12 x handelte es sich um Mehrfachrezidive, 2-11. Alle Patienten waren primär operativ behandelt, bei 20 Patienten erfolgte die Operation nicht im Gesunden, mit mikroskopischen Resten. Bei 10 Patienten war ein makroskopisch verbliebener Resttumor nachweisbar. Nur 8 Patienten kamen zur postoperativen Bestrahlung ohne Resttumor. Bei den Patienten mit Mehrfachrezidiven und Resttumor traten 8 Lokalrezidive auf. Insgesamt fanden sich 3 Rezidive am Feldrand. Bei 16 Patienten kam es zur Metastasierung: 2mal im Cerebrum, 6x im Skelett, 2x in der Hepar, 1x in der Haut, 1x im Mediastinum und 1x disseminiert. Das rezidivfreie Überleben nach 5 Jahren war mit 66% bei einem insgesamt schlechten Ausgangsmaterial akzeptabel, die 10 Jahre rezidivfreie Überlebensrate betrug 62%. Die Ergebnisse stimmen mit den Literaturangaben gut überein.

**Tabelle 3: Lokale Tumorfreiheit  
in Abhängigkeit vom R-Status 1 Jahr nach Bestrahlung**

Histologie	Pat.	Residualtumorstatus				Lokale	Lokale
		R0	R1	R2	RX	Kontrolle	Kontrolle %
Adenoidzystisches Carzinom	15	3/3	4/4	7/7	0/1	14/15	93
Mucoepidermoidcarzinom	7	2/2	1/1	2/3	1/1	6/7	86
Azinuszellcarzinom	4	1/1	1/2	0/1	0	2/4	50
Plattenepithelcarzinom	3	0	1/1	0/2	0	1/3	33
Adenocarcinom	4	1/1	1/1	0/2	0	2/4	50
Carzinom im pleomorphen Adenom	5	0	3/3	2/2	0	5/5	100
Andere Malignome	5	0	0	3/5	0	3/5	60
Parotismischtumoren	4	0	3/3	1/1	0	4/4	100
<b>Gesamt</b>	<b>47</b>	<b>7/7</b>	<b>14/15</b>	<b>15/23</b>	<b>1/2</b>	<b>37/47</b>	<b>79</b>

Die Untersuchungen über die Rezidivhäufigkeit bei Weichteilsarkomen ergaben erwartungsgemäß die deutliche Abhängigkeit vom Ausgangsstatus, Tumorgröße, Resektionsstatus und regionaler Lymphknotenmetastasierung (Tabelle 4).

**Tabelle 4: Neutronentherapie  
Lokale Kontrolle (LK) in Abhängigkeit von Tumorgröße,  
Grading und Resektionsstatus**

	T1	T2	G1/2	G3/4	R0	R1	R2
LK gesamt	62	62	71	40	68	68	51
LK im Bestrahlungsfeld	67	72	81	60	72	68	67

Zur Frage der Nebenwirkungen untersuchten wir das Auftreten von Fibrosen und möglichen schweren Nekrosen bzw. Hautulcera bei den Patienten mit bestrahlten Weichteilsarkomen. Tabelle 5 zeigt das Auftreten bzw. den Verlauf der Fibrosebildung, d.h. der Spätreaktionen am Unterhautfettgewebe. Die Reaktion war abhängig von der Feldgröße und erwartungsgemäß von der Dosis. Ein weiterer ausschlaggebender Faktor für die Spätreaktion war die vorausgegangene Therapie, d.h. die Anzahl der Operationen und eine mögliche Vorbestrahlung.

Tabelle 5: Neutronentherapie  
Nebenwirkungen - Ulkus

Pat. Nr.	Zeitraum nach Bestrahlung (Monate)	Dauer (Monate)	Lokalisation des Bestrahlungsfeldes	Anzahl der Op. vor Bestrahlung	Oberflächendosis OD [Gy]	Feldgröße [cm <sup>2</sup> ]	Bemerkung
41	6	6	Oberschenkel	2	12+6	12x15	hohe OD
65	12	12	Unterschenkel	0	30( <sup>60</sup> Co)+10	8x15 +7x9	Phlegmone, Amputation
174	6	2	Retroperitoneal	1	12+12 +30( <sup>60</sup> Co)	11x20 +13x18 +11x11	hohe OD
194	1	3	Oberschenkel	6	12	6x20	nach Fadenentleerung
281	36	20	Hüfte	0	12+6	12x15	Fistel nach Op
329	36	12	Oberschenkel	3	12	15x23	
552	1	6	Unterschenkel	0	12+12	7x9	hohe OD
340	12	6	Gluteal-region	4	12+6	20x11	hohe OD
280	6	4	Kniekehle	-	12	15x12	
176	0,5	0,5	Hals	-	12	9x11	Alkoholismus
250	0,5		Oberschenkel	9	35+e <sup>-</sup>	7x9	hohe OD
159	6	48	Unterschenkel	2	12	7x9	Insulinpflichtiger Diabetis mellitus
308	0	12	Fuß	-	12	7x9	Postoper. Wundheilungsstörung

***Zusammenfassend können wir nach 23 Jahren klinischer Anwendung schneller Neutronen feststellen:***

- die therapeutische Breite der schnellen Neutronen ist sehr schmal
- eine subtile Selektion der Patienten und Tumorentitäten ist erforderlich
- bei Tumoren mit großen GO-Fraktionen, d.h. bei sehr langsam proliferierenden Tumoren sind die schnellen Neutronen den Photonen überlegen
- Voraussetzung für den Einsatz sind hochenergetische Anlagen mit Multileafkollimator
- Die bessere Wirksamkeit konnten wir nachweisen bei der histologischen Tumornichtungsrate der Bronchial-, Oesophagus- und Magen-Ca, bei bestimmten Weichteilsarkomen und beim Parotistumor. In Literaturangaben wurde die bessere Wirksamkeit insbesondere bei Parotis-, Prostatakarzinom, bestimmten Weichteilsarkomen, Melanomen, Pancoast- und Adenokarzinomen der Lunge und bei Chondrosarkomen bestätigt.
- Für einen endgültigen Nachweis der Effektivität sind an guten Geräten unbedingt weitere klinische randomisierte Studien erforderlich.

Gestatten Sie uns zum Schluß nochmals auf die gute Zusammenarbeit unserer Mitarbeiter mit dem Rossendorfer Zyklotronteam hinzuweisen und allen Mitarbeitern dafür recht herzlich zu danken.

**Literatur**

- [1] Battermann, J.J., Breur, K., Hart, G.A.M., Van Peperzeel, H.A.  
Observation on pulmonary metastases in patients after single doses and multiple fractions of fast neutrons and cobalt<sup>60</sup> gamma rays  
Eur. J. Cancer 17, 539-548, 1981
- [2] Eichhorn, H.-J., Lessel, A., Dallüge, K.-H., Hüttner, J., Welker, K., Grunau, H.  
Pilot Study on Neutron Therapy  
Radiobiol. Radiother. 22, 262-292, 1981
- [3] Laramore, G.E., Griffin, T.W.  
Fast Neutron Radiotherapie: Where have we been and where are we going?  
The Jury is still out - Regarding Major et al, IJROBP  
Int. J. Radiation Oncology Biol. Phys. Vol. 32, 879-882, 1995
- [4] EORTC'95 Heavy - Particle - Therapy - Group  
Meeting in Orleans, 4.-6. Mai 1995

# Isotopenproduktion mit dem Rossendorfer Zyklotron

Dr. G. Wagner, VKTA Rossendorf e.V.

Mit der Inbetriebnahme des Forschungsreaktors WWRS und des Zyklotrons U-120 im ehemaligen Institut für Kernforschung Rossendorf waren günstige Voraussetzungen geschaffen worden, eine eigenständige Einrichtung zur kommerziellen Herstellung von radioaktiven Nukliden (im weiteren Isotopenproduktion) aufzubauen. Im Herbst 1958 begann die Produktion von radioaktiven Nukliden mit der Neutronenaktivierung von Brombenzol im Reaktor. Auf Grund des Bedarfes in der Forschung, der Industrie und zunehmend in der Medizin erhöhte sich beträchtlich der Umfang der Isotopenproduktion sowohl bezüglich der ausgelieferten Radioaktivitätsmengen wie auch der Vielzahl unterschiedlicher Nuklide und markierter Verbindungen.

In den ersten Jahren wurden zunächst nur Reaktorisotope auf der Basis von (n, $\gamma$ )-Aktivierungen hergestellt. Mit fortschreitender Zeit wurden von den Forschungseinrichtungen und insbesondere von der medizinischen Anwendung sogenannte trägerfreie Nuklide bzw. Nuklide mit hoher spezifischer Radioaktivität gefordert. Bei Reaktorbestrahlungen wird man dieser Forderung gerecht, wenn man zur Erzeugung von Radionukliden (n,p)- oder (n,f)-Reaktionen nutzt oder bei der (n, $\gamma$ )-Aktivierung hochangereicherte Materialien als Target einsetzt. Trägerfreie Nuklide können aber auch durch die Bestrahlung mit geladenen Teilchen im Zyklotron erzeugt werden. Für einige biologisch wichtigen Elemente gab es keine Möglichkeit, geeignete gammastrahlende Isotope im Kernreaktor herzustellen. Diese Lücke konnte im wesentlichen durch die Erzeugung gammastrahlender Isotope im Zyklotron geschlossen werden. Die Zyklotronisotope trugen somit zu einer wesentlichen Erweiterung der Anzahl an Isotopen bei, die in Forschung und Medizin angewandt wurden.

In Tabelle 1 sind die Vor- und Nachteile einer Isotopenherstellung im Kernreaktor und Zyklotron dargelegt.

Tab. 1:

Zusammenfassung der Kernreaktor- und Zyklotronprozesse

Eigenschaften	Kernreaktor	Zyklotron
Produktionsweise	Neutronenbestrahlung	Bestrahlung mit geladenen Teilchen
Hauptreaktionen	(n, $\gamma$ ), (n,p), (n,f)	(d,n), ( $\alpha$ ,n), (p,n)
Neutronen-Protonen-Verhältnis	Neutronenüberschuß	Protonenüberschuß
Zerfallsart des erzeugten Nuklides	$\beta^-$	$\beta^+$ , EC
Spezifische Aktivität	(n, $\gamma$ ) gering (n,p) hoch (n,f) hoch	hoch
Produktionskosten	gering	hoch

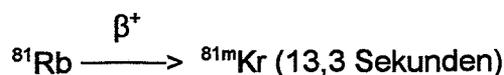
Die kommerzielle Produktion von Zyklotronisotopen begann mit der Herstellung von  $^{85}\text{Sr}$  und  $^{65}\text{Zn}$ . In der Folgezeit wurden am Rossendorfer Zyklotron noch folgende Nuklide für die Isotopenproduktion erzeugt:  $^{87}\text{Y}$ ,  $^{67}\text{Ga}$  und  $^{81}\text{Rb}$ . In Tabelle 2 sind die wesentlichen Parameter für die in Rossendorf kommerziell hergestellten Zyklotronnuklide dargestellt:

Tab. 2:  
Herstellungsparameter der Zyklotronisotope für die Isotopenproduktion

Nuklid	Halbwertszeit	Targetmaterial	Kernreaktion
$^{65}\text{Zn}$	244 Tage	Kupfer	$^{65}\text{Cu} (d,2n) ^{65}\text{Zn}$
$^{67}\text{Ga}$	78,3 Stunden	metallische Zinkschicht auf Silberblock	$^{67}\text{Zn} (d,2n) ^{67}\text{Ga}$
$^{85}\text{Sr}$	64,9 Tage	RbCl auf Kupfer- oder Silberblock	$^{85}\text{Rb} (d,2n) ^{85}\text{Sr}$
$^{87}\text{Y}$	80,3 Stunden	angereichertes $^{87}\text{Sr}$ als $\text{SrCl}_2$ auf Platinunterlage	$^{87}\text{Sr} (d,2n) ^{87}\text{Y}$
$^{81}\text{Rb}$	4,5 Stunden	NaBr auf Silberblock	$^{79}\text{Br} (\alpha,2n) ^{81}\text{Rb}$

Alle in Tabelle 2 aufgeführten Nuklide wurden in der medizinischen Forschung bzw. medizinischen Diagnostik benutzt.

Die Nuklide  $^{81}\text{Rb}$  und  $^{87}\text{Sr}$  verwendet man als Mutternuklide zur Herstellung von Nuklidgeneratoren. Dabei wird das Mutternuklid an einer geeigneten Matrix fixiert. Die Tochternuklide, die durch radioaktiven Zerfall des Mutternuklids nach



und



entstehen, werden periodisch mit einem geeignetem Elutionsmittel in der nuklearmedizinischen Einrichtung abgetrennt.

Das Hauptprodukt der Produktion von Zyklotronisotopen in Rossendorf war das Nuklid  $^{67}\text{Ga}$ . Es wurde als Galliumzitrat in einer isotonischen Lösung in verschiedene nuklearmedizinische Einrichtungen der ehemaligen DDR und ČSSR zur Tumordiagnostik geliefert. Die Herstellung erfolgte wöchentlich in einem Radioaktivitätsbereich von 4 - 6 GBq zum Referenzdatum.

Die kommerzielle Produktion von Zyklotronisotopen wurde durch folgende Faktoren wesentlich beeinflusst:

1. **Bestrahlungsparameter für Protonen, Deuteronen und  $\alpha$ -Teilchen:**  
Die verfügbaren Teilchenenergien gestatteten nur (d,2n)- und ( $\alpha$ ,2n)-Reaktionen mit akzeptablen Reaktionsausbeuten für Zyklotronnuklide mit Halbwertszeiten zwischen 2 und 70 Tagen.
  
2. **Targetmaterialien:**  
Bei der Bestrahlung von metallischen Targets war eine gute Kühlung erforderlich, um das Abdampfen von radioaktiven Stoffen während der Bestrahlung zu verhindern (z.B.  $^{67}\text{Ga}$ ).  
Die Bestrahlung von Salzschnmelzen auf metallischen Unterlagen war mit Einschränkungen verbunden. Einerseits war die Abführung der Reaktionswärme beim Übergang von der Salzschnmelze zum Metall ein begrenzender Faktor und andererseits war die Haftung der Salzschnmelze auf der Unterlage bei erhöhter thermischer Belastung nicht ausreichend. Aus diesem Grunde mußte die Bestrahlung der Salzschnmelzen mit niederen Strahlstromstärken und maximaler Vergrößerung des Brennfleckes durchgeführt werden. Die Ausbeute an Radioaktivität war relativ gering, und es konnte immer nur eine einzelne nuklearmedizinische Einrichtung mit dem Finalprodukt beliefert werden. Damit erlangten die Nuklide, hergestellt aus Targets mit Salzschnmelzen, nicht annähernd die Bedeutung wie  $^{67}\text{Ga}$ .
  
3. **Produktionsparameter:**  
Einen wesentlichen Einfluß auf die Produktion von Zyklotronisotopen hatten die Nebenreaktionen. Die kurzlebigen Nuklide aus Nebenreaktionen verursachten oftmals eine sehr hohe Strahlendosis der Targets zum Bestrahlungsende. Die Verarbeitung der Targets konnte erst 24 - 48 Stunden nach Bestrahlungsende erfolgen. Entstandene Nuklidverunreinigungen des gleichen Elements stellten eine weitere Begrenzung der Anwendung des gewünschten Nuklides dar. Zum Beispiel muß der Gehalt an  $^{66}\text{Ga}$  (9,3 Stunden) im  $^{67}\text{Ga}$  (78,1 Stunden) zum Zeitpunkt der Anwendung unter 1% liegen. Unter den Bedingungen der Bestrahlung im Zyklotron U-120 war dies ca. 140 Stunden nach Bestrahlungsende erreicht. Diese lange Wartezeit bedeutet, daß ca. 70 % des erzeugten  $^{67}\text{Ga}$  zum möglichen medizinischen Einsatz schon wieder abgeklungen waren.

In hervorragender Zusammenarbeit zwischen den Mitarbeitern des Zyklotrons und der Isotopenproduktion wurde unter Nutzung der optimal möglichen Parameter für die Bestrahlung am Rossendorfer Zyklotron eine kontinuierliche  $^{67}\text{Ga}$ -Produktion im nahezu wöchentlichen Rhythmus über 10 Jahre realisiert. Das Produktionsvolumen von 4 - 6 GBq zum Anwendungstag (Referenzdatum) war ausreichend zur Versorgung der nuklearmedizinischen Einrichtungen in der ehemaligen DDR wie auch Lieferungen in die angrenzende Tschechoslowakei.

# Das Zyklotron U-120 - Bedeutung für die Entwicklung des PET-Zentrums Rossendorf

J. Steinbach

## Vorbemerkung

Vierzig Jahre Zyklotron U-120, das sind auch 15 Jahre Arbeit für die Entwicklung und Anwendung der Positronen-Emissions-Tomographie (PET) an dieser Maschine. Ohne das Zyklotron U-120 hätte es am damaligen Zentralinstitut für Kernforschung keine radiochemischen Arbeiten zu PET gegeben und damit wären wesentlich schlechtere Ausgangsbedingungen für den Aufbau des heutigen modernen PET-Zentrums Rossendorf gegeben gewesen.

## Einleitung

Die Positronen-Emissions-Tomographie wurde für experimentelle Zwecke Ende der 70er Jahre nutzbar und eröffnete damals erstmals den Zugang für die direkte in vivo Darstellung von Funktionen des lebenden menschlichen Organismus und leitete damit eine neue Qualität der biomedizinischen Forschung ein. Ein Meilenstein war die erstmalige Darstellung von dopaminergen Rezeptoren im menschlichen Hirn im Jahre 1983 am National Institute of Health (USA).

Abgeleitet aus dieser internationalen Entwicklung der Nuklearmedizin wurde am damaligen Bereich Radioaktive Isotope beschlossen, auch für dieses Territorium die wissenschaftlichen und technischen Grundlagen für die damals weltweit in wenigen Zentren in Entwicklung begriffene PET-Technik zu erarbeiten. Diese Aktivitäten begannen unter der Leitung von Herrn Prof. G.-J. Beyer im Jahr 1982.

Für die Herstellung von Radiotracer bedeutet dies, zunächst die Targettechnik zur Herstellung von Positronen emittierenden Radionukliden zu entwickeln und selbst zu bauen, um die erforderlichen Radionuklide herstellen zu können. Vorerst waren  $^{18}\text{F}$  und mit etwas Abstand  $^{11}\text{C}$  von Interesse. Neben den Radionuklideigenschaften war für die weitere Nutzung die chemische Form des Radionuklides von größter Bedeutung, da sich daraus auch die in Frage kommende Kernreaktion ableitete.

Die Erzeugung und Nutzung kurzlebiger, neutronendefizitärer Radionuklide ist an die Verfügbarkeit von Teilchenbeschleunigern mit geeigneten Energien und Teilchen gebunden. Für die Herstellung der typischen Radionuklide für die PET, das sind  $^{18}\text{F}$  (Halbwertszeit: 110 min),  $^{11}\text{C}$  (Halbwertszeit: 20 min),

$^{15}\text{O}$  (Halbwertszeit: 2 min) und  $^{13}\text{N}$  (Halbwertszeit: 10 min), werden idealerweise Protonen mit Energien um 18 MeV und Deuteronen mit ca. 15 MeV benötigt, wobei die untersten noch sinnvollen Teilchenenergien bei 10 MeV (Protonen) und 5 MeV (Deuteronen) liegen. Die Teilchenintensitäten sollten bei optimalen Bedingungen wenigstens 10  $\mu\text{A}$  betragen; für die heutigen Bedürfnisse werden Strahlströme bis 40  $\mu\text{A}$  genutzt.

### Das Zyklotron U-120 als eine Voraussetzung für PET in Rossendorf

Als Grundlage für die Radionuklidgewinnung stand als Teilchenbeschleuniger das Zyklotron U-120 zur Verfügung. Der daneben in Frage kommende Tandemgenerator erwies sich wegen zu geringer Strahlintensität als wenig geeignet. Der für die  $^{123}\text{I}$  - Herstellung genutzte Kanal 4 bot sich als Bestrahlungsplatz an. Damit waren die Strahlparameter fixiert: Deuteronen mit ca. 14 MeV (max. 10  $\mu\text{A}$ ),  $\text{H}_2^+$  mit ca. 7 MeV (max. 10  $\mu\text{A}$ ).

Seitens des Beschleunigers waren damit recht günstige Bedingungen für die Erzeugung von  $^{18}\text{F}\text{F}_2$  nach der  $^{20}\text{Ne}(d,\alpha)^{18}\text{F}$  gegeben. Das  $^{18}\text{F}\text{F}_2$  war damals eine unentbehrliche Ausgangssubstanz für das wichtigste PET-Radiopharmakon, der 2- $^{18}\text{F}$ Fluor-2-desoxy-D-glucose.

Die PET-Technik brachte völlig neue Anforderungen: Bisher waren im ZfK nur Feststoff-Produktions-Targets bestrahlt worden; jetzt mußten Gastargets bei Fülldrücken um 20 bar bestrahlt werden. Diese Targets konnten jedoch nur durch dünne Metallfolien (um 20  $\mu\text{m}$ ) von der Umgebung abgeschlossen werden, um keine Energie-Verluste der beschleunigten Ionen hinnehmen zu müssen. Das war der damaligen Leitung der Beschleuniger zu riskant und es wurde gefordert, nur bei geringsten Strahlströmen zu arbeiten. Außerdem durfte nur mit zusätzlich gestützten Target-Fensterfolien gearbeitet werden (Abb. 1).

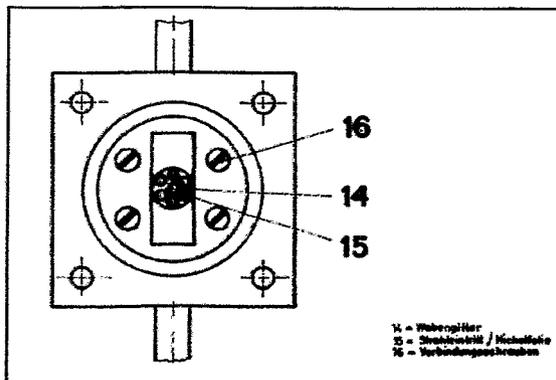


Abb. 1:  
Stützgitter vor der Fenster-Folie  
lassen nur ca. 30 % des Strahles in  
das Targetgas

Nach einer Reihe von Experimenten, zunächst mit und später ohne Folien-Stützgitter, wurde der Beweis für die Praktikabilität der Vorgehensweise erbracht. Das 1983 eingeführte  $[^{18}\text{F}]\text{F}_2$ -Targetsystem (Abb. 2 und 3) wurde in modifizierter Form bis Anfang 1997 genutzt. Im Jahre 1995 wurden auf dieser Basis die Patientenuntersuchungen im PET-Zentrum Rossendorf aufgenommen.

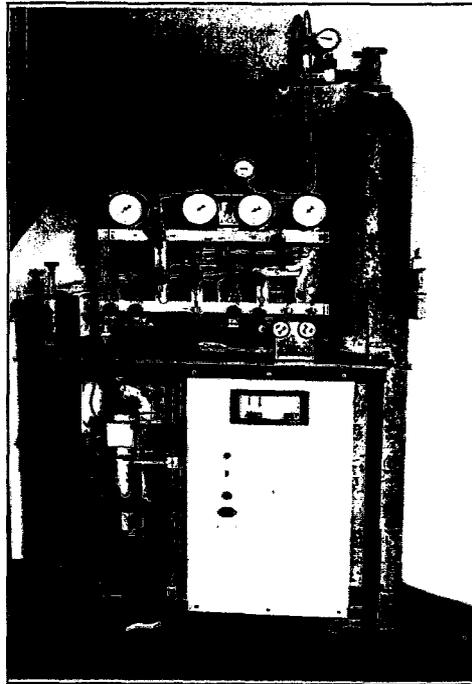


Abb. 2: Gastargetsystem zur Erzeugung von  $[^{18}\text{F}]\text{F}_2$  (Stand 1983)

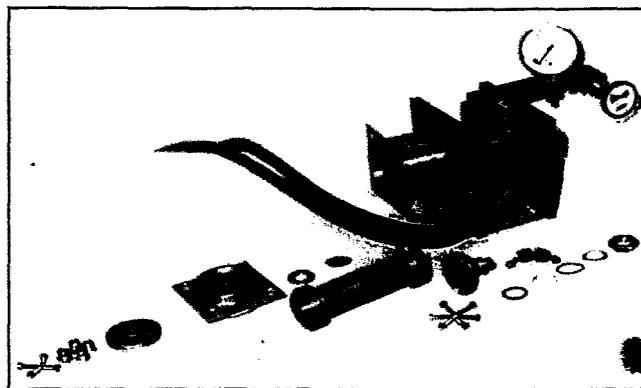


Abb. 3: Zerlegtes Gastarget zur Erzeugung von  $[^{18}\text{F}]\text{F}_2$  (Stand 1983)

Mit der Notwendigkeit der Erzeugung von  $^{11}\text{C}$  zeigte sich ein gravierender Nachteil der Parameter des Zyklotrons: Der günstigste Zugang zum  $^{11}\text{C}$  ist die  $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$ -Reaktion. Die Schwellenergie dieser

Reaktion, oberhalb derer eine nutzbare Ausbeute zu erwarten ist, liegt bei ca. 5 MeV. Bedingt durch zwei vom Strahl zu durchdringende Stahlfolien (am Strahlrohrende und als Targeteingang) von insgesamt ca. 50  $\mu\text{m}$  Dicke wird die Energie der  $\text{H}_2^+$ -Ionen von ursprünglich 7 MeV so weit abgesenkt, daß die Radionuklidausbeute zu gering wird. Deshalb wurde nach Alternativen gesucht und ein Targetsystem entwickelt, mit dem  $^{11}\text{C}$  in der gewünschten chemisch einheitlichen Form als  $[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$  gewonnen werden konnte. Dieses neuartige Hochtemperatur-Feststofftarget nutzte die  $^{10,11}\text{B}(\text{d},\text{xn})^{11}\text{C}$ -Reaktionen [1]; die Handhabungseigenschaften entsprechen dem eines Gastargets.

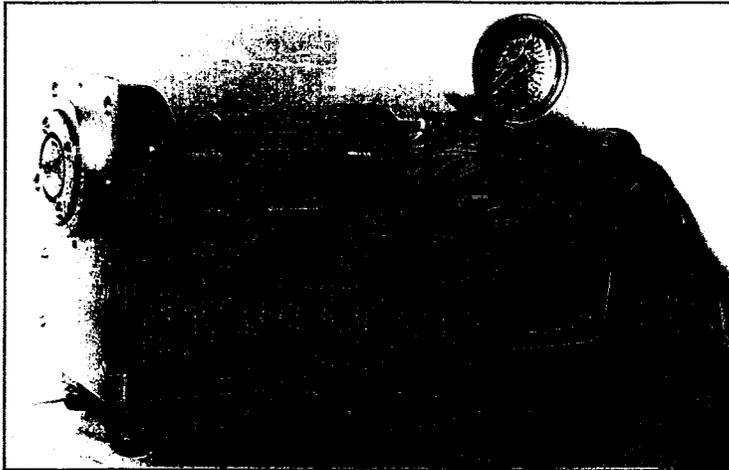


Abb. 4: Rotierendes Hochtemperatur-Feststofftarget zur  $^{11}\text{C}$ -Herstellung mit Eigenschaften eines Gastargets

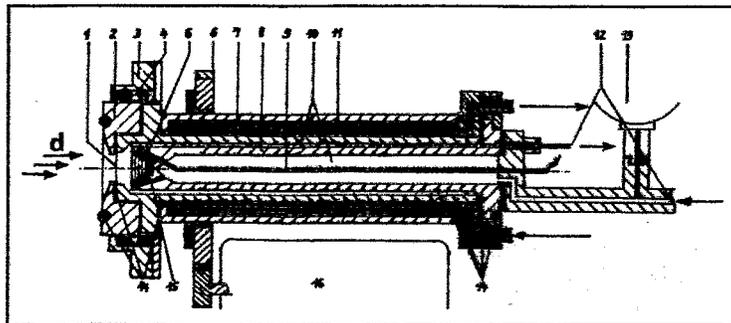


Abb. 5: Schnittdarstellung des rotierenden  $^{11}\text{C}$ -Hochtemperatur-Feststofftargets

- |                                  |   |  |
|----------------------------------|---|--|
| 1 Fenster-Folie 20 $\mu\text{m}$ | 2, 3, 4 Frontflansch mit Rotationslager | 5 $\text{B}_2\text{O}_3$ -Targetmaterial |
| 6 Getrieberad                    | 7 Targetwasser                          | 8 Targethalter                           |
| 9 Thermoelement                  | 10 Trägergas                            | 11 Kühlwasser                            |
| 12 Gasein- und Gasauslaß         | 13 Manometer                            | 14 Dichtringe                            |
| 15 Verbindungsbohrung            | 16 Motor / Getriebe                     |  |

Dieses interessante Prinzip einer rotierenden Targetkonstruktion wurde in Zusammenarbeit mit dem damaligen Bereich für Reaktorphysik (Dr. Grunwald) entwickelt (Abb. 4 und 5).

Auf dieser Basis wurde der Beginn der radiochemischen Arbeiten mit  $^{11}\text{C}$  ermöglicht. Die Limitierung der möglichen Gesamtausbeute auf ca. 5 GBq und der hohe technische und Wartungsaufwand zeigten jedoch, daß ein Gastarget unter Nutzung der  $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$ -Reaktion wesentlich günstigere Voraussetzungen böte.

Parallel zu den Arbeiten zum  $^{11}\text{C}$  wurde ein alternativer Zugang zum  $^{18}\text{F}$  dringlich. Während nach der  $^{20}\text{Ne}(d,\alpha)^{18}\text{F}$ -Reaktion - bei vertretbarem Aufwand - nur stark geträgertes  $^{18}\text{F}$  (hoher Anteil an nicht radioaktivem Fluor) in relativ geringer Radionuklidenausbeute (heutiger Stand: max. ca. 12 GBq) gewonnen werden kann, eröffnet die  $^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}$ -Reaktion neue Alternativen. Damit können bei heutigem Stand bis 200 GBq [ $^{18}\text{F}$ ]Fluorid mit sehr hoher spezifischer Aktivität erzeugt werden, einer Voraussetzung für die Erzeugung moderner PET-Radiopharmaka in hohen Mengen. Ausgehend von diesen Erkenntnissen zur  $^{11}\text{C}$ - und  $^{18}\text{F}$ -Erzeugung wäre eine entscheidende Erhöhung der Protonenenergie am U-120 erforderlich gewesen, erschien aber nicht realisierbar.

Seitens der neuen Leitung des Zyklotrons (Dr. Guratzsch) wurde diese Notwendigkeit erkannt und trotz aller Probleme einer derartigen tiefgreifenden Veränderung der Maschine das Vorhaben geplant und realisiert. Diese Aufgabe wurde von allen beteiligten Mitarbeitern (Dr. Tyrroff, Dr. Pausch, Dr. Alenitckij, St. Preusche, H. Odrich, W. Gläser, B. Hartmann, Dr. Linnemann, H. Roß, J. Weißig, H. Taubert) mit Vehemenz vorangetrieben. Im Sommer 1989 wurde das erste [ $^{11}\text{C}$ ]CO<sub>2</sub> nach der  $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$ -Reaktion am U-120 erzeugt.

Damit wurde sowohl seitens des Zyklotrons als auch der Targettechnik eine neue Entwicklungsphase eingeleitet; zur Targettechnik soll hier berichtet werden:

In Vorbereitung auf die Nutzung der Protonenreaktionen wurde über eine Kooperation mit dem „ATOMKI“-Institut Debrecen (Dr. P. Mikecz) die Entwicklung der neuen  $^{11}\text{C}$ - und  $^{18}\text{F}$ -Targets eingeleitet.

Die in Rossendorf angestrebte Protonenenergie wurde auf ca. 12 MeV veranschlagt. Dementsprechend wurde der Protonenstrahl des Debrecener Zyklotrons von ca. 20 MeV auf ca. 12 MeV gebremst und unsere Targets dort getestet.

Das  $^{11}\text{C}$ -Gastarget wurde entsprechend der mit dem [ $^{18}\text{F}$ ]F<sub>2</sub>-Gastarget gewonnenen Erfahrungen ausgelegt bzw. berechnet; der Prototyp hat auch sofort die gewünschten Parameter erbracht.

Im Falle des  $^{18}\text{F}$ -Targets waren die Verhältnisse komplizierter, hier war die Entwicklung kleinvolumiger Systeme (erforderlich wegen der Verwendung von [ $^{18}\text{O}$ ]Wasser) auch international sehr stark in Fluß gekommen. Deshalb wurden zunächst - wiederum in Zusammenarbeit mit Dr. Grunwald - theoretische und experimentelle Untersuchungen zur thermischen Belastbarkeit vorgenommen. Dies machte sich

erforderlich, da bei einem Targetvolumen von nur 200 µl die Grenze für die maximal nutzbare Stromstärke sicher ermittelt werden mußte, da es sich hier um Energiedichten von 600 W/cm<sup>3</sup> handelt. Diese Untersuchungen [2] waren in der Folgezeit Ansätze für Betrachtungen auch anderer Arbeitsgruppen.

Ein Meilenstein für die Entwicklung der PET in Rossendorf war dann im Sommer 1989 der Abschluß der Arbeiten zur Erhöhung der Protonenenergie. Anstelle der mit Vorsicht vorausgesagten 12 MeV standen 13 MeV zur Verfügung, was die Radionuklid-Gesamtausbeuten deutlich erhöhte.

Es konnten sofort die neuen Targetsysteme eingesetzt werden (Abb. 6). Im Falle des <sup>11</sup>C-Gastargets hat das entsprechende Produktionstarget am U-120 dann bis zu Beginn des Jahres 1997 gearbeitet (Abb. 7).

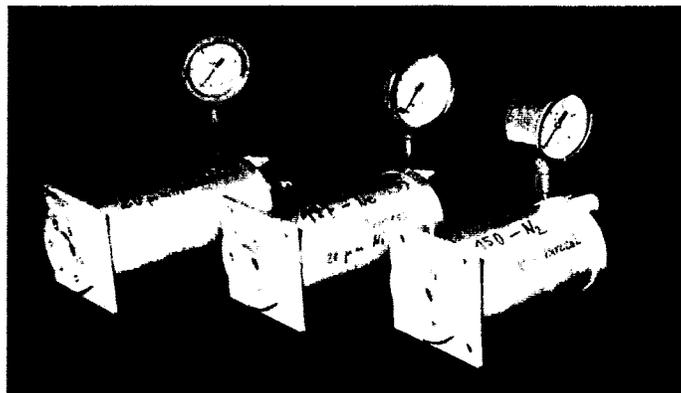


Abb. 6: Gastargets zur Erzeugung von [<sup>11</sup>C]CO<sub>2</sub>, [<sup>15</sup>O]O<sub>2</sub> und [<sup>18</sup>F]F<sub>2</sub> (Stand 1989)

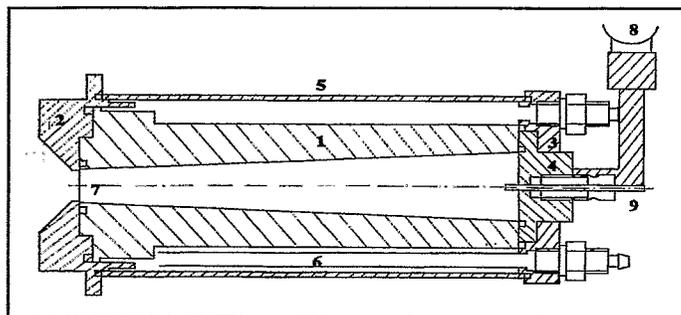


Abb. 7: Schnittdarstellung des Gastargets zur Erzeugung von [<sup>11</sup>C]CO<sub>2</sub>

- |                       |                      |                               |
|-----------------------|----------------------|-------------------------------|
| 1 Targetbehälter      | 2 Front-Flansch      | 3 Anpreßplatte für 4          |
| 4 Rück-Flansch        | 5 Wassermantel-Hülle | 6 Kühlwasser-Zufuhr           |
| 7 Fenster-Folie 20 µm | 8 Manometer          | 9 Targetgas Zu- und Abführung |

Als [<sup>18</sup>F]Fluorid-Produktionstarget wurde - dann schon im Rahmen des neugegründeten Institutes - ein Hochdrucktarget (Abb. 8) eingesetzt, mit dem am U-120 bei einem Strahlstrom von 10 µA bis 25 GBq [<sup>18</sup>F]Fluorid erzeugt wurden.

Das war gleichzeitig die Voraussetzung für die regelmäßige Erzeugung von Radiopharmaka in hohen Aktivitätsmengen ab 1995. Bis Anfang 1997 wurde es als Grundlage für die Patientenversorgung genutzt.

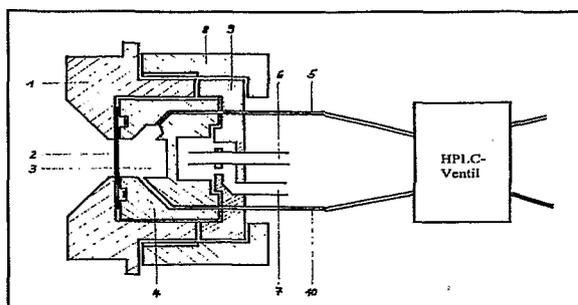


Abb. 8: Schnittdarstellung des Hochdruck-Wassertargets zur Erzeugung von  $[^{18}\text{F}]\text{F}$  (Stand 1994)

- |                                   |                  |                      |
|-----------------------------------|------------------|----------------------|
| 1 Front Flansch                   | 2 Fenster-Folie  | 3 Targetwasserkammer |
| 4 Silber-Targetkörper             | 5 He-Zuführung   | 6 Kühlwasserzufuhr   |
| 7 Kühlwasserabfuhr                | 8 Überwurfmutter | 9 Wasserflansch      |
| 10 Targetwasser Zu- und Abführung |                  |                      |

Wegen der verschiedenartigen Anforderungen (1 Flüssig-Target, 3 Gastargets, 1 Feststofftarget, 1 Meßtarget) war im Jahr 1990 in Zusammenarbeit zwischen der PET-Gruppe (E. Lösel) und der Zyklotron-Mannschaft unter wesentlicher Beteiligung von R. Brückner eine Targetwechsellanlage fertiggestellt worden, die zu einer wesentlichen Erhöhung der Flexibilität führte (Abb. 9) und bis Anfang 1997 im Einsatz war. Die integrierte Helium-Kühlung erhöhte maßgeblich die Zuverlässigkeit des Gesamtsystems. Das Feststofftarget diente zur Erzeugung von  $^{123}\text{I}$  nach der  $^{122}\text{Te}(d,n)^{123}\text{I}$  - Reaktion.



Abb. 9:

Targetwechsellanlage zur fernbedienten Ankopplung verschiedener Produktionstargets an das Strahlrohr

Das gesamte Targetsystem wurde von einem kleinem Nebenraum des Experimentiersaales aus mit Targetgasen befüllt, die erzeugten Radionuklide in die radiochemischen Labors befördert und die Targetwechsellage bedient. Über verschiedene Meßgeräte konnte der Verlauf der Bestrahlungen verfolgt werden.

Parallel zur Erzeugung der PET-Radionuklide wurden ab 1982 zunächst die Anfänge für eine Radiochemie / Radiopharmazie unter Nutzung der Radionuklide  $^{18}\text{F}$  und  $^{11}\text{C}$  bearbeitet und damit eine Reihe von  $^{18}\text{F}$ - und  $^{11}\text{C}$ -markierten Verbindungen synthetisiert, die in Tierexperimenten eingesetzt wurden.

Zeitgleich mit den politischen Umbrüchen 1989 waren auch die technischen Möglichkeiten zur Entwicklung der PET in der DDR ausgeschöpft, da alle Ausrüstungen inclusive der Einzelkomponenten in Einzelfertigung gefertigt werden mußten. Nach Auflösung der Akademie der Wissenschaften wurde das Forschungszentrum Rossendorf gegründet, in dessen Rahmen das Institut für Bioanorganische und Radiopharmazeutische Chemie entstand. Damit war das Arbeitsgebiet im Rahmen der Abteilung "PET-Tracer" auf eine stabile Grundlage gestellt. Auf Empfehlung des Wissenschaftsrates entstand als gemeinsame Einrichtung mit dem Universitätsklinikum der TU Dresden das erste PET-Zentrum Ostdeutschlands. Es konnte 1997 eingeweiht werden.

Die beschriebene Target-Technik war in Zusammenwirken mit dem modifizierten Zyklotron U-120 eine gute Basis für den Start sowohl für radiochemische und radiopharmazeutische Forschungsarbeiten sowie für den Beginn der Patientenuntersuchungen. Diese Technik wurde dann mit Inbetriebnahme des modernen PET-Zyklotrons "Cyclone 18/9" (Abb. 10) Anfang 1997 überflüssig. Die gewonnenen Erfahrungen waren sehr hilfreich gerade bei der Inbetriebnahme und der Modifizierung der Targettechnik des modernen PET-Zyklotrons.

Insgesamt möchte ich auf eine hervorragende Zusammenarbeit mit der gesamten Zyklotronmannschaft unter Leitung von Herrn Dr. Hartmut Guratzsch verweisen.

Maßgeblichen Anteil am Erfolg der hier vorgestellten Arbeiten hatte als Mitglied der initialen PET-Arbeitsgruppe ab 1982 Herr Eberhard Lösel, der zahlreiche technischen Lösungen, darunter die gesamte Targettechnik, entwickelte, die Anlagen konstruierte und fertigte. Ein zuverlässiger Ansprechpartner seitens des Zyklotrons war stets Herr Rudolf Brückner. Er unterstützte nachhaltig die erfolgreiche Arbeit und beteiligte sich weit über das gewöhnliche Maß hinaus an der Realisierung des Vorhabens, beispielsweise durch Entwicklung und Bau zahlreicher elektronischer Steuerungen. Auch Herrn Dr. Klaus Günther (Leipzig) soll hier für seine tatkräftige Mitarbeit gedankt werden.

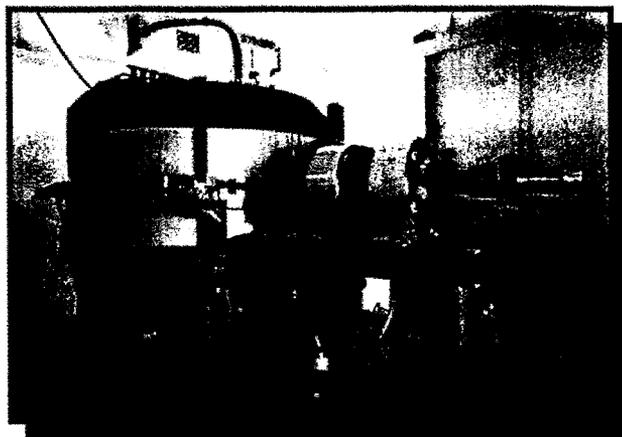


Abb. 10: PET Zyklotron "Cyclone 18/9" der Fa. IBA Belgien des PET-Zentrums Rossendorf,  
18 MeV Protonen (30  $\mu$ A auf Target), 9 MeV Deuteronen (20  $\mu$ A auf Target)

Der Autor ist seit 1982 für die PET-Entwicklung zuständig.

- [1] A rotating  $B_2O_3$  target for  $^{11}C$  production with the attributes of a gas target  
J.Steinbach, E.Lösel, K.Günther, R.Brückner, G.J.Beyer  
Appl.Radiat.Isot.40,1989,625-627
  
- [2] Temperature Course in Small Volume [ $^{18}O$ ]Water Targets for [ $^{18}F$ ]F Production  
J. Steinbach, K. Günther, E. Lösel, G. Grunwald, P. Mikecz, L. Andó, F. Szelecsenyi, G.J. Beyer  
Appl. Radiat. Isot. 41(1990)753-56

## **$^{211}\text{At}$ -markierte Verbindungen als potentielle Radiopharmaka**

G.Wunderlich, W.-G.Franke, Universitätsklinikum Dresden, Klinik für Nuklearmedizin

Vor einem halben Jahrhundert teilten Corson, McKenzie und Segre die Entdeckung eines neuen Radioisotops am Zyklotron in Berkeley, Californien, mit, das sie zunächst als Eka-Iod in das Periodensystem der Elemente einordneten. Das Halogen erhielt bald danach die noch heute gültige Bezeichnung Astatine bzw. Astat (At). Wenige Jahre später erfolgten durch Hamilton und Soley die ersten Mitteilungen zum Verhalten des neuentdeckten Halogens im Organismus.

Sowohl die strahlenphysikalischen Eigenschaften, speziell des Radionuklids  $^{211}\text{At}$ , ( $T_{1/2} = 7,2$  h, mittlere Energie der  $\alpha$ -Teilchen 6,8 MeV) als auch die chemischen Eigenschaften bieten sich für Zwecke der Endoradionuklidtherapie an.  $^{211}\text{At}$  ist das einzige Astatisotop dessen Eignung für nuklearmedizinische Zwecke in der Literatur diskutiert wird. So erfolgte bereits 1954 durch Hamilton, Durbin und Parrott die erste Injektion von  $^{211}\text{At}$ -Astatid am Menschen.

Systematische Studien nach dieser spektakulären Erstanwendung am Menschen zeigten, daß die Anreicherung von Astatid in der Schilddrüse und in anderen Organen im Vergleich zum Iodid deutlich niedriger liegt und eine Metabolisierung analog zum Iod nicht nachweisbar ist. Die Versuche wurden Ende der 50-er Jahre eingestellt, da im Tierexperiment benigne und maligne Geschwülste nach subletaler Astatgabe beobachtet wurden. Aus heutiger Sicht ist die Ursache dafür in der ungenügenden Radionuklidreinheit des damals verfügbaren  $^{211}\text{At}$  zu sehen.

Mit der Verbesserung der Bestrahlungstechnik am Zyklotron kam es in den 70-er Jahren beginnend mit Arbeiten von Appelman international zu einem Aufschwung in der Astatforschung. Noch 40 Jahre nach der Erstanwendung von Astat am Menschen ist aus der internationalen Literatur gleichbleibendes Interesse am Astat als Radiotherapeutikum abzulesen. Derzeit arbeiten etwa 4-5 Gruppen in Europa und 2-3 Gruppen in Übersee mit an der Entwicklung von  $^{211}\text{At}$  Radiopharmaka. In Dresden wird  $^{211}\text{At}$  seit etwa 1980, beginnend mit Arbeiten der Gruppe um Dreyer (AG Radiochemie der TU Dresden), sowohl für die chemische Grundlagenforschung als auch seit 1984 für die radiopharmazeutische Forschung und die experimentelle Nuklearmedizin eingesetzt. Eine weiterführende Zusammenarbeit hat mit der strahlenphysikalischen Abteilung der Sahlgrenska Universitätsklinik in Göteborg (Schweden) zur Thematik Astatradiopharmaka und Targetentwicklung begonnen.

**Folgende Kriterien sprechen für die Verwendung von  $^{211}\text{At}$  in einem Radiopharmakon:**

1. Im Gegensatz zu den meisten anderen Alphastrahlern in den Zerfallsreihen schwerer radioaktiver Elemente treten in Kombination mit dem Alphazerfall beim  $^{211}\text{At}$  keine Betastrahlung und nur geringe Gammastrahlung auf. Das Zerfallsschema ist übersichtlich. Die Folgeprodukte sind nur gering radiotoxisch.
2. Die Alphastrahlung ist durch eine hohe lineare Energieübertragung um  $100 \text{ keV}/\mu\text{m}$  mit einer Reichweite der Alphapartikel von  $60\text{-}80\mu\text{m}$  im Gewebe gekennzeichnet. Daraus resultiert eine streng lokalisierte Strahlenwirkung bei weitgehender Schonung des umgebenden Gewebes.

3. Die den Alphazerfall begleitende Quantenstrahlung (80keV) läßt die Beobachtung des Bioverhaltens astatierter Verbindungen mit konventioneller nuklearmedizinischer Technik (Gammakamera) zu.
4.  $^{211}\text{At}$  ist praktisch trägerfrei erhältlich, daher können astatierte Produkte eine hohe spezifische Radioaktivität besitzen.
5.  $^{211}\text{At}$  ist am Zyklotron in der notwendigen hohen Radionuklidreinheit durch Bestrahlung von Wismuttargets nach der Kernreaktion  $^{209}\text{Bi}(\alpha,2n)^{211}\text{At}$  in ökonomisch vertretbarer Ausbeute herstellbar.
6. Die chemische Verwandtschaft zum Iod gestattet es bedingt, iodierte Verbindungen als Modelle für die in der Herstellung aufwendigeren Astatprodukte zu benutzen.
7. Aufgrund der Halbwertszeit von 7,2h bestehen keine besonderen Anforderungen an die Entsorgung der radioaktiven Abfälle. Patienten könnten nach kurzer Aufenthaltsdauer aus dem Kontrollbereich entlassen werden.
8. In der Arbeitsgruppe Radiochemie der TU Dresden bestehen aufgrund langjähriger grundlegender Forschungsarbeiten zur Chemie von Astat weitreichende Erfahrungen z.B. in der thermochromatografischen Aufarbeitung der Targets und in der Herstellung von Ausgangsverbindungen ( $\text{At}^0\cdot\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{AtCl}_2^-$  etc.) für weitere Umsetzungen.

Die effektive Tumorthherapie mit  $\alpha$ -Strahlern ist wegen der geringen Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen nur möglich, wenn das Radionuklid in die Tumorzelle, an deren Oberfläche oder in die unmittelbare Nachbarschaft der Tumorzelle gebracht wird.

Entsprechende Versuche nach systemischer Gabe von Astatradiopharmaka führten international noch nicht zu einer befriedigenden Radionuklidanreicherung. Die bisher ausschließlich auf Tierexperimente und Untersuchungen an Zellkulturen beschränkten Tests konnten trotz unbestreitbarer Teilerfolge keine für human-medizinische Zwecke ausreichende intratumorale Radioaktivitätskonzentration erreichen. Dies ist einerseits bedingt durch die mangelnde Spezifität der zugrunde liegenden biologischen Prozesse und andererseits durch die unzureichende in vivo Stabilität der radioaktiven Markierung der potentiellen Radiopharmaka.

Trotz theoretischer Vorbehalte und zahlreicher praktischer Probleme wird in der internationalen Literatur und auf einschlägigen Kongressen immer wieder das Interesse der Fachwelt an der Therapie mit  $\alpha$ -Strahlern, speziell dem  $^{211}\text{At}$ , deutlich und die Diskussionen für und wider eine derartige Therapieform nehmen vor dem Hintergrund der allgemein unbefriedigenden Situation bei der Tumorthherapie beachtlichen Raum ein. Die eigenen Erfahrungen unserer Arbeitsgruppe lassen die Anwendung von  $^{211}\text{At}$  Radiopharmaka durchaus erfolgversprechend erscheinen.

## Markierung von potentiellen Radiopharmaka

Grundsätzlich stehen zwei Möglichkeiten zur Verfügung, um eine ausreichende Astatakkumulation im Zielgewebe zu erreichen:

Die **metabolische** Tumorthherapie bietet sich an erster Stelle an, da die Applikation wenig aufwendig ist und die Anreicherung nach i.v. Injektion über Stoffwechselforgänge im Tumor bzw. direkt in den Tumorzellen möglich ist. Nachteilig ist die einige Zeit dauernde Anreicherung im Zielgewebe, während der es in der Regel zur Freisetzung von Astat aus seinen Verbindungen und damit zu unerwünschter Strahlenbelastung außerhalb des Tumors kommt. Außerdem verringert sich das  $^{211}\text{At}$  durch den physikalischen Zerfall in der Anreicherungsphase.

Dem steht die **lokale** Therapie nach intraarterieller oder intratumoraler Applikation von z.B. astatmarkierten Partikeln gegenüber, deren Abstrom aus dem Zielgebiet nach der Injektion behindert ist. Die geringe Reichweite der Alphateilchen spricht nach unseren Erfahrungen nicht gegen diese Therapieform in gut vaskularisierten Tumoren z.B. im Kopf-Hals-Bereich.

Prinzipiell bieten sich zur Herstellung der Astatradiopharmaka zwei verschiedene Verfahrenswege an:

1. Die **direkte Markierung** an geeigneten tumoraffinen Verbindungen, wie Antikörpern, Antikörperbruchstücken, Peptiden, niedermolekularen Verbindungen oder Partikeln geschieht in der Regel durch Halogenaustausch an aromatischen Verbindungen oder Austauschreaktion an zinnorganischen Präkursoren. In den letzten Jahren wird über die Herstellung derartiger Verbindungen und ihre Testung an Zellkulturen und in Tierexperimenten ausführlich berichtet. Neben Antikörpern betrifft dies vor allem :
  - At- $\alpha$ -methyltyrosin
  - At-MNDP (Naphthoquinoldiphosphonat)
  - At-methylenblau
  - At-vinylestradiol
  - At-benzylguanidin
2. Die **indirekte Markierung** unter Verwendung von bifunktionellen Verbindungen, die einerseits zur Reaktion mit Astat enthaltenden Verbindungen oder Komplexen befähigt sind und andererseits mit tumoraffinen Antikörpern oder deren Bruchstücken über funktionelle Gruppen (z.B. -SH, -NH, -COOH) reagieren können.

## Herstellung von $^{211}\text{At}$ am Zyklotron

Am Zyklotron U-120 im Kernforschungszentrum Rossendorf wird  $^{211}\text{At}$  durch Bestrahlung von metallischem Bismut mit  $\alpha$ -Teilchen einer Energie von 28 MeV trägerfrei in hohen Ausbeuten und höchster Radionuklidreinheit erhalten (Abb.1). Der Anteil an hochradiotoxischem At-210 konnte durch geeignete Wahl der Bestrahlungsbedingungen auf  $< 10^{-5}\%$  der Gesamtradioaktivität begrenzt werden.

Die Targetaufarbeitung findet in den Räumen der AG Radiochemie der Abteilung Chemie an der TU Dresden statt. Das  $^{211}\text{At}$  enthaltende Trägermaterial wird mechanisch vom Aluminiumtarget abgetrennt und thermochromatografisch aufgearbeitet (Abb.1). Etwa drei Stunden nach Bestrahlungsende steht eine wässrige Lösung von  $\text{At}^0 \cdot \text{H}_2\text{O}$  für weitere Markierungsreaktionen zur Verfügung.

### **Beispiele zu Forschungsarbeiten in der Klinik und Poliklinik für Nuklearmedizin in Dresden**

Seit 1985 hat es umfangreiche eigene Arbeiten zur Markierung von diversen Verbindungen mit Astat mit der Orientierung auf eine Anwendung in der klinischen Praxis gegeben.

So wurden durch Austauschmarkierung At-Amphetamin, At-Methylguanidin sowie diverse aromatische Verbindungen synthetisiert. Die in Ortho- oder Parastellung markierten Aromaten wurden weiter mit Antikörpern bzw. Proteinen umgesetzt.

Ein spezielles von der DFG gefördertes Projekt befaßt sich derzeit mit der Markierung von Proteinen über die enzymatische Umsetzung astatierter Sialinsäuren (Abb. 2).

Am erfolgreichsten waren in der Vergangenheit Astatierungen von Partikeln, speziell aus Humanserumalbumin (HSA), hergestellt im ehemaligen ZfK Rossendorf.

In beispielhafter Zusammenarbeit zwischen der Arbeitsgruppe am Zyklotron im Forschungszentrum Rossendorf, der AG Radiochemie der TU Dresden und verschiedenen Kliniken und Instituten des Universitätsklinikums gelang es, diese Mikrosphären (ROTOP B20) mit einem Durchmesser um  $20\mu\text{m}$  in hoher Ausbeute und in vivo Stabilität mit  $^{211}\text{At}$  zu beladen.

Das Präparat wurde in umfangreichen tierexperimentellen Tests auf seine Eignung für die intraarterielle Tumorthherapie geprüft und schließlich im HNO-Bereich im Sinne eines Heilversuchs erfolgreich appliziert. Dabei wurden über die zuführende Arterie  $^{211}\text{At}$  markierte HSA-Mikrosphären in das Rezidiv eines Zungenkarzinoms infundiert. Unter Berücksichtigung einer relativen biologischen Wirksamkeit von 7 wurde eine Äquivalentdosis von 2100 Sv im Zielgebiet abgeschätzt. Im Versorgungsgebiet der zur Injektion verwendeten Arterie war 6 Wochen nach der Therapie kein vitales Tumorgewebe nachweisbar.

Damit wurde ein fundierter Beitrag zur internationalen Diskussion über die Chancen einer effektiven nuklearmedizinischen Therapie mit  $\alpha$ -Strahlern geleistet. Die Entwicklung geeigneter Radiopharmaka auf der Basis der vorhandenen Erfahrungen sollte in Zusammenarbeit zwischen den Zyklotronbetreibern, der AG Radiochemie am Institut für Analytische Chemie und dem Universitätsklinikum unbedingt weiterbetrieben werden.

# Astatherstellung und Astataufarbeitung

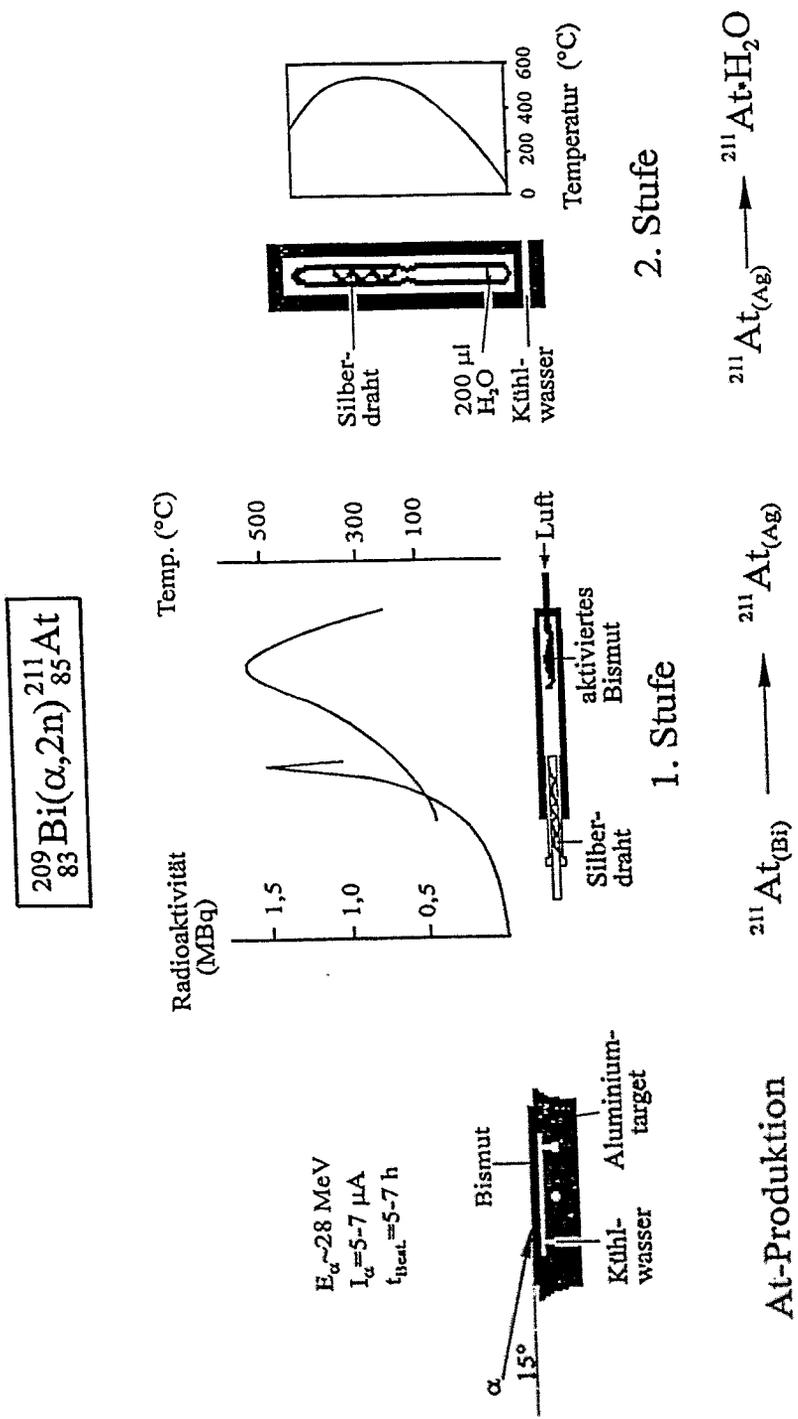
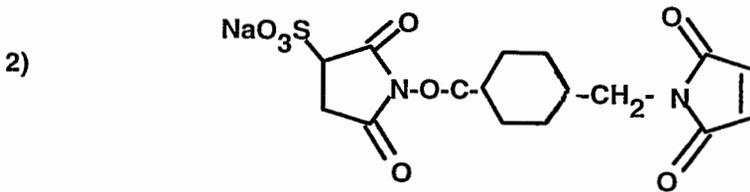
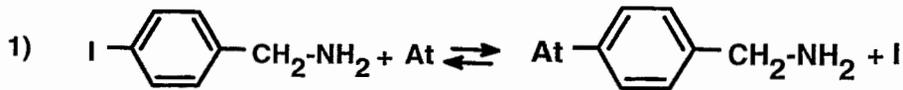
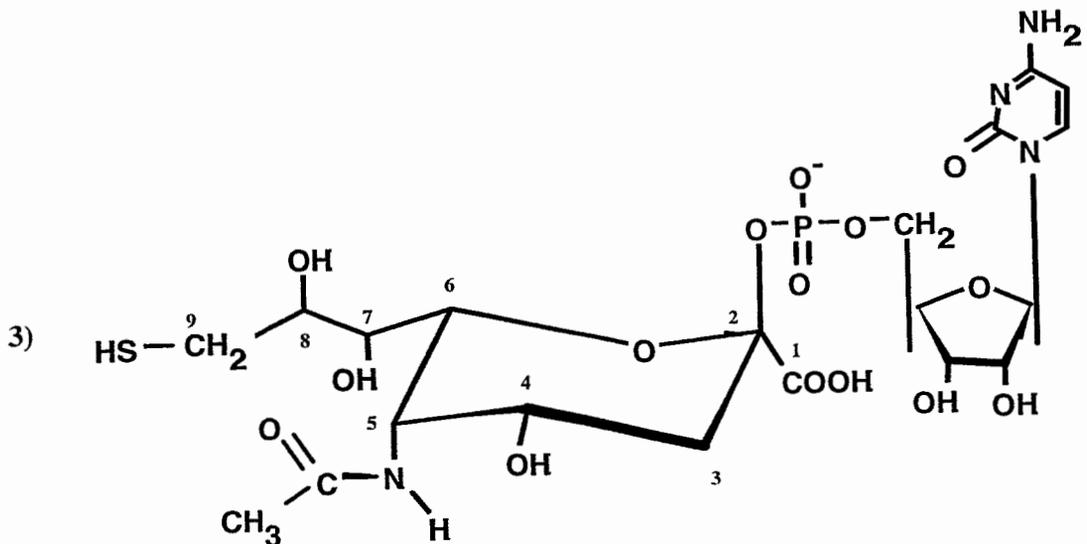


Abb. 1

**Abb. 2: Regiospezifische Markierung von Antikörpern (Glykoproteinen) durch Modifizierung der Saccharidbestandteile**



Sulfosuccinimidyl-4-(N-maleimidomethyl)cyclohexan-1-carboxylat (Sulfo.SMCC)



5-N-Acetyl-9-deoxy-9-thio-neuraminsäure (9-Thio-Neu5Ac)

### Reaktionsschritte:

1. Isotopenaustauschreaktion am 3-Iodbenzylamin zum 3-Astatobenzylamin (1)
2. Umsetzung des Produkts mit einer heterobifunktionellen Zwischenverbindung (Sulfo-SMCC) (2)
3. Reaktion der Zwischenverbindung mit SH-Gruppen direkt am Protein oder einem -SH substituierten Sialinsäurederivat (3)
4. Enzymatische Umsetzung des astatierten, modifizierten Sialinsäureprodukts mit Sialinsäureakzeptorstellen am Antikörper (Glykoprotein)

# $^{211}\text{At}$ -markierte monoklonale Antikörper zur Therapie von kleinen Tumoren und $^{211}\text{At}^-$ zur Therapie von Schilddrüsentumoren

Ulrika Berndtsson, Tom Bäck, Eva Forssell Aronsson, Lars Jacobsson, Sture Lindegren und Stig Palm  
Department of Radiation Physics, Sahlgrenska University Hospital,  
S-413 45 Göteborg, Schweden

Gunnar Skarnemark  
Department of Nuclear Chemistry, Chalmers University of Technology,  
S-412 96 Göteborg, Schweden

Das Nuklid  $^{211}\text{At}$  ist ein  $\alpha$ -Strahler mit 7.2 Stunden Halbwertszeit. Die  $\alpha$ -Energie beträgt 5.8 MeV. Die Radioimmuntherapie mit  $^{211}\text{At}$ -markierten monoklonalen Antikörpern sollte zu einer wirksamen Methode bei der Therapie von kleinen Tumoren führen. Diese Art der Therapie soll konventionelle Therapiemethoden erweitern und die Möglichkeit bieten, die Verbreitung von Mikrometastasen zu verhindern. Speziell für die Therapie von kolorektalen und Ovarial-Karzinomen werden die Antikörper C215, C241 und C242 bzw. Ov185 und Ov197 untersucht. Die Untersuchungen umfassen auch Studien von  $^{211}\text{At}$  als Astatid-Ion zur Therapie von Schilddrüsentumoren.

Das  $^{211}\text{At}$  wird im Rossendorfer Zyklotron durch Bestrahlung von Wismut-Targets mit  $\alpha$ -Teilchen hergestellt. Die bestrahlten Wismut-Targets gelangen per Luftfracht nach Göteborg. Hier wird durch Destillation das Astat abgetrennt. Untersuchungen zur Destillation und Markierungsreaktionen werden mit dem Ziel von In-vitro- und In-vivo-Experimenten durchgeführt. Die Arbeiten stehen in engem Kontakt mit dem FZR Rossendorf und der Technischen Universität Dresden.

# Physikochemische Charakterisierung des Seaborgiums: Experimentelle Vorbereitung am U-120

S. Hübener

Forschungszentrum Rossendorf e.V., Institut für Radiochemie

Die Herstellung und Charakterisierung neuer Elemente ist auch über 60 Jahre nach den Pionierarbeiten von Perrier und Segrè, die zur Entdeckung des Technetiums führten, eine aktuelle wissenschaftliche Herausforderung. Das Spektrum der künstlichen Elemente wurde in den letzten Jahren an der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt bis zum Element 112 erweitert, das schwerste Element, dessen chemische Eigenschaften experimentell untersucht wurden, ist das Element 106, Seaborgium. Einer internationalen Kollaboration gelang es 1996, anhand weniger Atome in Experimenten am UNILAC der GSI zu zeigen, daß Seaborgium unter gleichen Bedingungen wie Molybdän und Wolfram zu einem flüchtigen Oxychlorid reagiert, dessen Flüchtigkeit geringer oder gleich derjenigen des Wolframdi-oxydichlorides ist [1]. Zur Vorbereitung dieser Experimente wurde auch das U-120 des FZR genutzt [2]. Komplexchemische Untersuchungen in wäßriger Lösung demonstrierten ebenfalls die Ähnlichkeit zwischen Seaborgium und Wolfram [1, 3] und erst kürzlich wurde am UNILAC der GSI in einem weiteren, vom Institut für Radiochemie des FZR am U-120 vorbereiteten gaschemischen Experiment die Bildung und Hochtemperaturflüchtigkeit von Seaborgiumoxidhydroxid nachgewiesen [4].

Aufgrund der bisher vorliegenden experimentellen Befunde [1, 3, 4] ist Seaborgium der 6. Gruppe des Periodensystems der Elemente zuzuordnen. Diese Aussage ist nicht trivial, da sich die chemischen Eigenschaften der schwersten Elemente aufgrund der relativistischen Geschwindigkeitszunahme der Elektronen deutlich von den bei einfacher Extrapolation im Periodensystem zu erwartenden Eigenschaften unterscheiden können. Eine korrekte Einordnung der schwersten Elemente in das Periodensystem setzt das chemische Experiment voraus.

In den folgenden Abschnitten soll erläutert werden, wie die physikochemische Charakterisierung des Seaborgiums als Oxidhydroxid mittels isothermer on-line Hochtemperaturgaschromatographie am U-120 vorbereitet wurde.

Seaborgium ist wie die anderen Transactiniden nur in Kernreaktionen mit schweren Ionen an Beschleunigern wie dem UNILAC der GSI oder dem U-400 in Dubna zugänglich, wobei die Produktionsraten der kurzlebigen Isotope  $^{263}\text{Sg}$  ( $t_{1/2} = 0,9 \text{ s}$ ),  $^{265}\text{Sg}$  ( $t_{1/2} = 7,4 \text{ s}$ ) und  $^{266}\text{Sg}$  ( $t_{1/2} = 21 \text{ s}$ ) bei wenigen Atomen pro Tag liegen.

Daraus ergibt sich die Aufgabe, die chemischen Eigenschaften des Seaborgiums an einzelnen Atomen zu untersuchen. Eine umfassende Darstellung der Problematik chemischer Untersuchungen mit einzelnen Atomen würde den Rahmen dieses Beitrages sprengen, auf einige methodische Aspekte soll aber eingegangen werden.

Zur Untersuchung einzelner Atome sind besonders solche chemischen Reaktionssysteme geeignet, die zu einer Verteilung der untersuchten Spezies zwischen zwei Phasen führen. Das können zwei nicht miteinander mischbare flüssige Phasen oder auch eine gasförmige und die Oberfläche einer festen Phase sein. Dabei ist es in Konzentrationsbereichen, die eine Wechselwirkung gleichartiger Spezies untereinander ausschließen, für die statistische Signifikanz eines Experiments prinzipiell gleich, ob man eine statistisch signifikante Anzahl einmal prüft, oder eine einzelne Spezies viele Male. Zur Untersuchung einzelner Atome sind chromatographische Methoden besonders prädestiniert, da sie eine Vielzahl aufeinanderfolgender einstufiger Verteilungsprozesse realisieren. Die chromatographische Meßgröße Retentionszeit steht im direkten Zusammenhang mit der Thermodynamik und Kinetik der Grundreaktionen des Verteilungsprozesses. Chromatographische Methoden können damit gleichzeitig zur Trennung und zur physikochemischen Charakterisierung angewandt werden.

Dem bereits von Hahn, Meitner und Straßmann angewandten Prinzip der Zweischritt-Identifikation folgend, muß der chromatographischen Trennung des untersuchten Radionuklids von den in der Kernreaktion im erdrückenden Überschuß gebildeten Nebenprodukten dessen eindeutiger Nachweis anhand seiner Zerfallseigenschaften folgen. Die chromatographische Trennung muß dazu nicht nur selektiv und mit hoher Ausbeute, sondern auch schnell genug erfolgen, damit die Trennung beendet ist, bevor das untersuchte Radionuklid zerfällt. In dieser Hinsicht sind gaschromatographische Methoden den flüssigchromatographischen Methoden aufgrund der wesentlich höheren Diffusionsgeschwindigkeiten in Gasen deutlich überlegen. Die Anwendung gaschromatographischer Methoden zur Untersuchung der chemischen Eigenschaften der schwersten Elemente hat in Rossendorf Tradition, die vor über 20

Jahren vor allem durch Arbeiten von Bernd Eichler in Dubna begründet [5] und für die Untersuchung des Seaborgiums von uns fortgesetzt wurde.

Nach der Entscheidung für gaschromatographische Methoden galt es, ein geeignetes chemisches System auszuwählen. Unsere Kollegen aus der Schweiz entschieden sich für die gaschromatographische Untersuchung der Oxyhalogenide. Innerhalb der Element-106-Kollaboration abgestimmt, wählten wir die Adsorption von Oxidhydroxiden an Quarzglasoberflächen als chemisches Reaktionssystem. Die Oxidhydroxide der Elemente der 6. Gruppe, von der Zugehörigkeit des Seaborgiums zu dieser Gruppe wurde bei der Konzipierung der Experimente ausgegangen, haben zwar eine deutlich geringere Flüchtigkeit als die Halogenide und Oxyhalogenide, sind aber durch eine höhere Selektivität gegenüber den Actiniden und Elementen der 5. und 4. Gruppe gekennzeichnet, deren Abtrennung eine Voraussetzung für die eindeutige Detektion des Seaborgiums ist. Die deutlichen Eigenschaftsabstufungen der Oxidhydroxide innerhalb der 6. Gruppe sollten zudem die Beantwortung des Fragenkomplexes erleichtern, ob Seaborgium mehr dem Molybdän oder dem Wolfram ähnelt, inwieweit seine Eigenschaften durch relativistische Effekte determiniert werden.

Die physikochemische Charakterisierung eines neuen Elementes erfolgt generell durch den Vergleich mit bekannten, hinreichend charakterisierten Elementen. Dazu müssen die zu vergleichenden Elemente simultan untersucht werden bzw. deren Eigenschaften unter den Bedingungen des Transactinidenexperimentes bekannt sein.

Als chemisch ähnliche Vergleichselemente für die Charakterisierung des Seaborgiums kommen vor allem Molybdän und Wolfram in Betracht. Sowohl Extrapolationen innerhalb der 6. Gruppe des Periodensystems [6] als auch quantenchemische Rechnungen unter Berücksichtigung relativistischer Effekte [7] sagten eine Ähnlichkeit zwischen Seaborgium und Wolfram voraus. Die chemischen Eigenschaften beider Vergleichselemente sind ausführlich untersucht worden, allerdings nicht in dem von uns gewählten System. Dazu lagen nur wenige experimentelle Daten vor [8-10]. Informationen über den Mechanismus der an der Quarzglasoberfläche ablaufenden Grundreaktionen fehlten völlig.

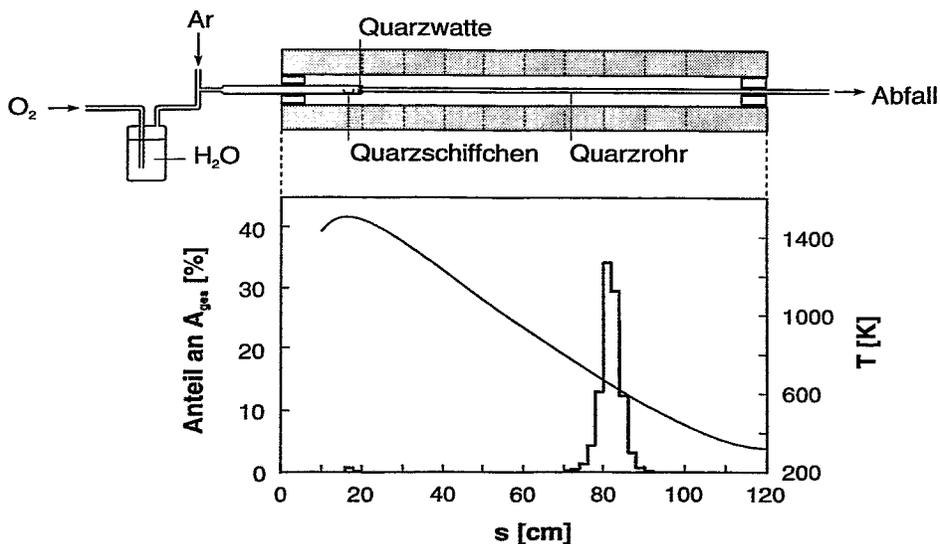
Die experimentelle Vorbereitung verfolgte deshalb einerseits die Untersuchung von Molybdän und Wolfram unter gleichen Bedingungen wie Seaborgium. Andererseits

wurde zur methodischen Vorbereitung der aufwendigen Transactinidenexperimente das Seaborgium durch diese Elemente modelliert.

Die Vorbereitung von Transactinidenexperimenten erfolgt generell nicht an Großbeschleunigern wie dem UNILAC. Wir sind in der glücklichen Lage, für derartige Modelleexperimente das Zyklotron U-120 nützen zu können.

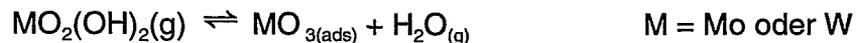
Am Zyklotron U-120 stellten wir dazu die trägerfreien Molybdänisotope  $^{93m}\text{Mo}$  ( $t_{1/2} = 6,9 \text{ h}$ ) und  $^{99}\text{Mo}$  ( $t_{1/2} = 65,9 \text{ h}$ ) in  $^{nat}\text{Zr}$  ( $\alpha, xn$ ) Reaktionen durch Bestrahlung von Zirkoniumfolien mit 27 MeV  $\alpha$ -Teilchen her,  $^{176}\text{W}$  ( $t_{1/2} = 2,5 \text{ h}$ ) und  $^{177}\text{W}$  ( $t_{1/2} = 2,25 \text{ h}$ ) in der ( $\alpha, 2n$ )- bzw. ( $\alpha, n$ )-Reaktion aus  $^{174}\text{Hf}$ .  $^{181}\text{W}$  ( $t_{1/2} = 121,2 \text{ d}$ ) wurde durch Bestrahlung von Tantal mit 14 MeV-Protonen hergestellt.

Mittels Thermochromatographie, einer Variante der Gaschromatographie in offenen Trennsäulen mit einem negativen Temperaturgradienten in Fließrichtung des Trägergases, wurden Reaktionsmechanismus, Thermodynamik und Kinetik der an Quarzglasoberflächen ablaufenden Adsorptions- und Desorptionsreaktionen von Oxid- und Hydroxidspezies des Molybdäns und Wolframs untersucht. In **Abb. 1** ist eine Thermochromatographieanordnung schematisch dargestellt.



**Abb. 1:** Thermochromatographie, experimentelle Anordnung mit Temperaturgradient und Thermochromatogramm

Ein wesentliches Ergebnis dieser umfangreichen, vor allem von Annett Vahle ausgeführten und mehrfach ausgezeichneten Arbeiten ist die experimentell belegte Aussage, daß die Gaschromatographie von Oxidhydroxiden des Molybdäns und Wolframs in Quarzglassäulen bei Verwendung von feuchtem Sauerstoff als Reaktivgas-komponente des Trägergases durch dissoziative Adsorptions- und assoziative Desorptionsreaktionen determiniert wird [11- 13]:



Damit wird die Verweilzeit im adsorbierten Zustand bzw. die Schnelligkeit dieser Reaktionsgaschromatographie nicht nur durch die Temperatur sondern vor allem durch die Konzentration des Reaktionspartners Wasser bestimmt. Aufgrund dieser Charakteristika und unter Berücksichtigung der relativ hohen thermochromatographischen Abscheidungstemperaturen bzw. geringen Flüchtigkeit der untersuchten Spezies stellt das von uns untersuchte System wesentlich höhere Anforderungen an ein Seaborgiumexperiment als das Oxychloridsystem, das durch höhere Flüchtigkeiten der Oxychloride und prinzipiell schneller ablaufende Adsorptions- und Desorptionsvorgänge ohne Änderung des chemischen Zustands gekennzeichnet ist.

Modellexperimente mußten zeigen, ob und unter welchen Bedingungen das Oxidhydroxidsystem den Anforderungen an ein Seaborgiumexperiment genügt, wie ein solches Experiment methodisch und apparativ zu gestalten ist.

Während die durch Ivo Zvara geprägten Dubnaer gaschemischen Transactinidenexperimente auf einer direkt an das Targetsystem zur Erzeugung der untersuchten Radionuklide angekoppelten Thermochromatographie und Detektion von nuklidun-spezifischen Spontanspaltungen beruhen [14], orientierten wir uns an der fort-geschrittenen OLGA-Technik, die von Heinz Gäggeler und Mitarbeitern an der GSI entwickelt und in den letzten Jahren am PSI wesentlich vervollkommnet wurde [15]. Die On-Line Gaschemie Apparat-Technik beruht auf der Ankopplung der isothermen on-line Gaschromatographie an das Targetsystem mittels Gas-Jet und der spektroskopischen on-line Detektion korrelierter Zerfallsereignisse der aus der Chromatographiesäule austretenden Spezies.

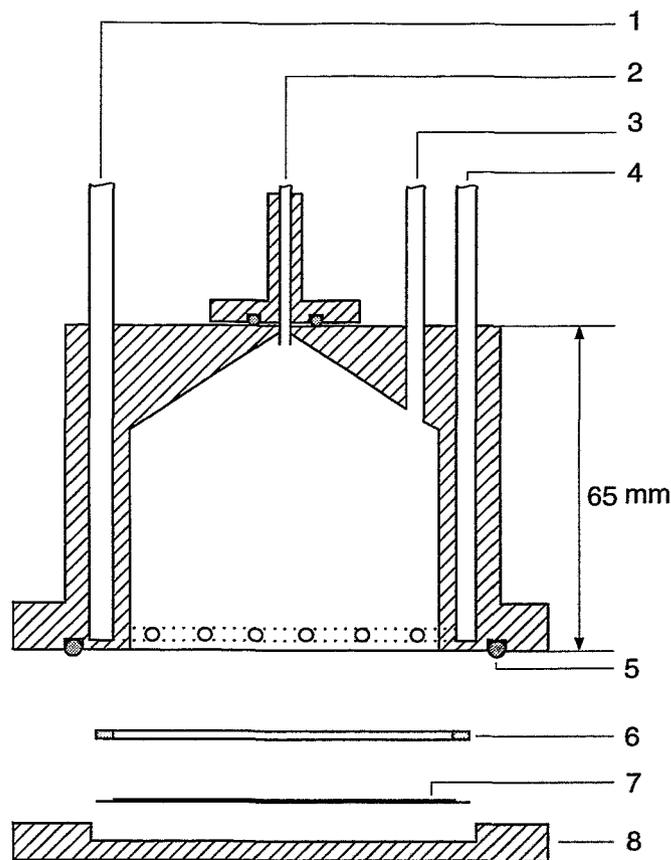
In einem Gas-Jet System werden die aus dem dünnen Target herausgeschleuderten

Kernreaktionsprodukte in Helium abgebremst, dem vor der Targetkammer Aerosolpartikel beigemischt werden, an die sich die thermalisierten Kernreaktionsprodukte anlagern. Das mit den Kernreaktionsprodukten beladene Aerosol wird durch dünne Kapillaren kontinuierlich dem chemischen Experiment zugeführt, wobei die Transportzeiten nur wenige Sekunden betragen.

Zur Installation eines Gas-Jets am Zyklotron U-120 nutzten wir die bereits vorhandenen Einrichtungen für die Neutronentherapie zur Produktion von Neutronen über die  ${}^9\text{Be} (d,n) {}^{10}\text{B}$  -Reaktion zur Spaltung eines dünnen  ${}^{235}\text{U}$ -Targets. Die Verwendung der Uraniumkernspaltung hat den Vorteil, daß einerseits die Rückstoßenergien der Spaltprodukt nuklide und der zu modellierenden Kernreaktionsprodukte vergleichbar sind und andererseits gleichzeitig mit den zur Modellierung des Seaborgiums geeigneten kurzlebigen Molybdänisotopen  ${}^{103} - {}^{105}\text{Mo}$  Spaltprodukt nuklide wie das  ${}^{144}\text{La}$  entstehen, die als Aerosolindikatoren bzw. zur Modellierung der Actinidenabtrennung gut geeignet sind. Bei der Entwicklung eines Gas-Jets, der für das an Schwerionenbeschleunigern generell als Jetgas verwendete Helium ausgelegt ist, konnten wir auf eigene Erfahrungen mit der Gas-Jet-Technik zurückgreifen [16].

Zur Erzielung kurzer Nuklidverweilzeiten und hoher Ausbeuten wurde die in **Abb. 2** schematisch dargestellte Targetkammer so ausgelegt, daß die Thermalisierung der Spaltprodukte erst kurz vor Austritt des Jetgases aus der relativ großvolumigen Kammer erreicht ist. Das große Kammervolumen ist dem geringen Bremsvermögen des Heliums und dem maximalen Kammerdruck von 3 bar geschuldet. Die durch eine Abdeckung des Uraniumtargets mit 5  $\mu\text{m}$  Aluminium bewirkte Verringerung der kinetischen Energie der Spaltprodukt nuklide äußert sich in einer Ausbeutesteigerung des leichteren Spaltzweiges auf das Vier- bis Achtfache und an Nukliden des schwereren Spaltzweiges auf das Doppelte der ohne Einsatz der Al-Folie erhaltenen Ausbeute. Das gesamte Targetsystem ist in einem an die Strahlführung der Neutronentherapie angepaßten Polyäthylentubus eingehaust, der auch 30 mm Polyäthylen zur Moderation der Neutronen aufnimmt. Durch die Moderation wird eine Verdopplung der Spaltausbeute erzielt. Die in der Targetkammer thermalisierten Spaltprodukt nuklide lagern sich an  $\text{MoO}_3$  -Aerosolpartikel an, mit denen das Jetgas vor Eintritt in die Targetkammer beladen wurde und werden durch eine 20 m lange Kapillare in ca. 5 s zu den im Meßraum des Zyklotrons aufgebauten experimentellen Anordnungen transportiert. Bei einer Deuteronenstromstärke von 20  $\mu\text{A}$  auf dem Berylliumtarget beträgt die

summarische Aktivitätsausbeute an Spaltprodukt nukliden bis zu 500 kBq/h.

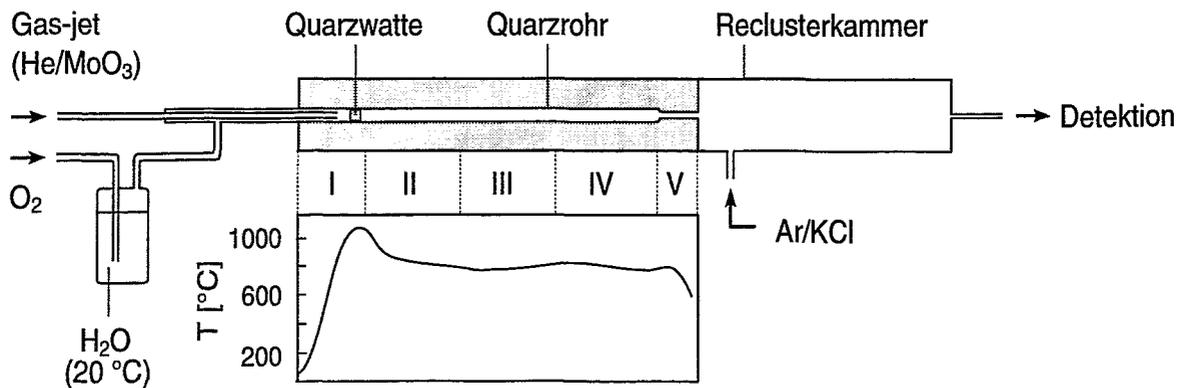


**Abb. 2:** Targetkammer des am U-120 installierten Radiochemie-Gas-Jets, schematisch, Material: Titanium, 1,4: Gaseinleitung, 2: Gasaustrittskapillare, 3: Druckmeßstutzen, 5: Dichtring, 6: Klemmring, 7:  $^{235}\text{U}$ -Target, Anreicherung 89,8 %,  $275 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  auf Titanium und 8: Bodenplatte

Dieser Gas-Jet wurde inzwischen auch von Kern- und Radiochemikern der TU Dresden [17] und des PSI Villigen [2] zur Vorbereitung von Transactinidenexperimenten genutzt. Wir nutzten den Gas-Jet vor allem zur Entwicklung, Erprobung und Optimierung experimenteller Anordnungen für die isotherme on-line Hochtemperaturgaschromatographie zur Untersuchung kurzlebiger Mo-, W- und Sg-Isotope im  $\text{O}_2\text{-H}_2\text{O}_{(\text{g})}/\text{SiO}_{2(\text{s})}$ -System.

Nachdem sich die am PSI vorhandene OLGA-Technik für die on-line Gaschromatographie der Oxide und Hydroxide kurzlebiger Mo-, W- und Sg-Isotope als ungeeignet

erwiesen hatte [11], entwickelten wir einen Mehrzonenchromatographieofen für Reaktions- und Chromatographietemperaturen bis 1400 K, den wir in Analogie zur OLGA II-Technik erprobten. Die experimentelle Anordnung ist in **Abb. 3** schematisch dargestellt. Die Ankopplung der Chromatographie an die Detektion erfolgt dabei über eine sogenannte Reclusterkammer, in der die aus der Chromatographiesäule austretenden, bei hohen Temperaturen flüchtigen Spezies erneut an Aerosolpartikel angelagert und damit zur Detektionseinrichtung transportiert werden. Für Radionuklide mit einer Halbwertszeit von 1 min erreichten wir Maximalausbeuten von 10 % und minimale Verweilzeiten von 2 min, Charakteristika, die für Seaborgiumexperimente indiskutabel sind. In Optimierungsversuchen konnte festgestellt werden, daß Verweilzeit- und Ausbeuteverluste vor allem in der Reclusterkammer auftraten.



**Abb. 3:** Isotherme On-line Hochtemperaturgaschromatographie, experimentelle Anordnung mit Reclusterkammerankopplung an die Detektionseinheit, schematisch

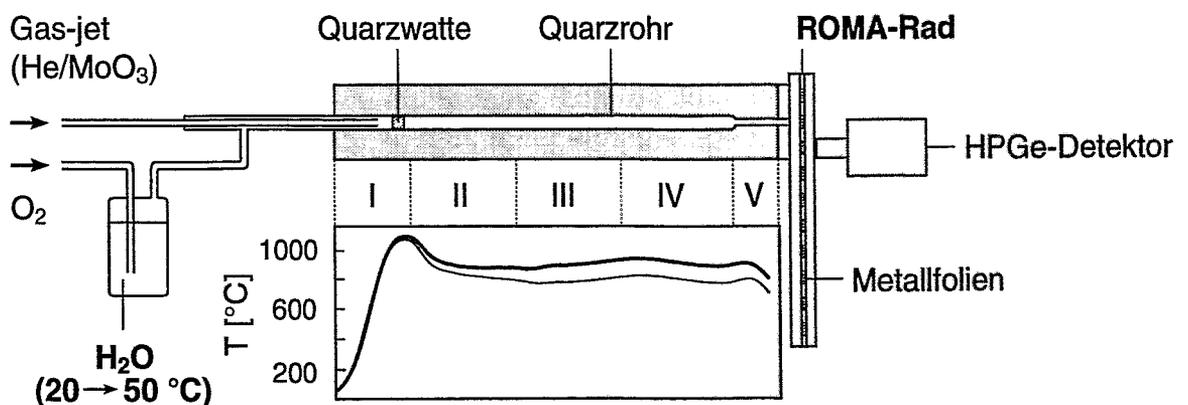
Zur Ausbeuteerhöhung und Verkürzung der Verweilzeit wurde daraufhin die Detektion direkt an die Chromatographie gekoppelt, wozu der Chromatographieofen an die in der GSI entwickelte Detektionseinheit ROMA (rotating wheel multi detector analyzer) angeflanscht wurde.

In der ROMA werden mit Gasen antransportierte Radionuklide auf Folien gesammelt, von denen bis zu 64 kreisförmig auf einem Rad angeordnet sind. Programmgesteuert werden die beaufschlagten Folien nach definierten Sammel- bzw. Detektionszeiten sukzessive vor mehrere, ebenfalls kreisförmig angeordnete Detektoren gedreht, wobei simultan jeweils eine neue Folie die Sammelposition erreicht. Energie- und Zeitinformationen zu den detektierten Zerfallsereignissen ermöglichen eine eindeuti-

ge Nuklidbestimmung. Auf Einzelheiten der Programmsteuerung, Detektionsmethoden und Informationsverarbeitung kann hier nicht eingegangen werden.

Zur Direktankopplung an die ROMA sind die mit über 900 K aus der Chromatographiesäule austretenden Spezies auf Metallfolien zu kondensieren. In Testexperimenten erwies sich Aluminium hinsichtlich Ausbeute, Oxidations- und Temperaturbeständigkeit den ebenfalls getesteten Materialien Kupfer und Nickel überlegen. Das Ausbeutemaximum wurde bei einem Druck von ca. 80 mbar in der Abscheidungsposition erzielt. Um in den Detektionspositionen als Voraussetzung für eine hochaufgelöste Alphaspektroskopie gleichzeitig einen geringeren Druck einstellen zu können, wurde zwischen Chromatographieofen und Folienrad eine Abscheidungskammer eingebaut, die neben der getrennten Druckregulierung auch die Kühlung des Folienrades gewährleistet und damit eine unzulässige Erwärmung der Detektoren verhindert.

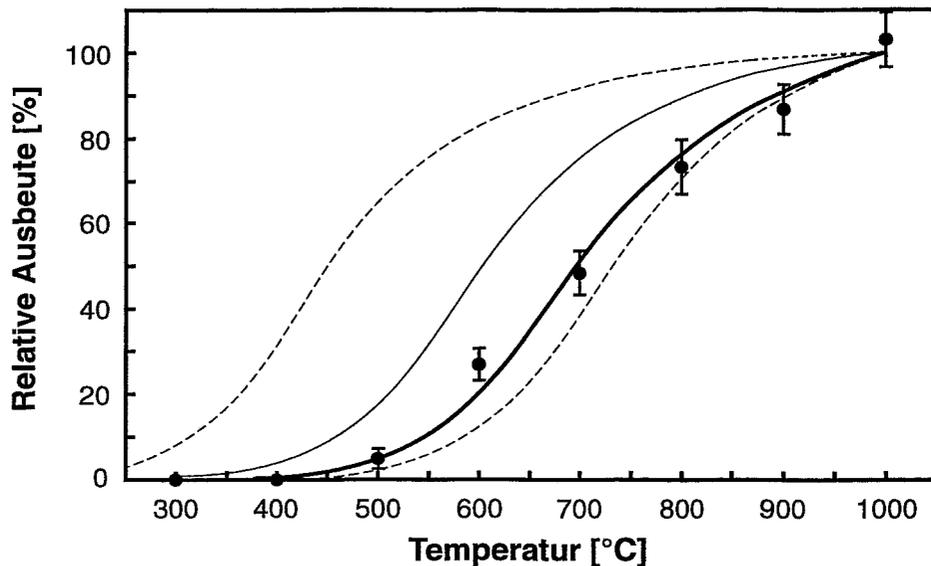
**Abb. 4** zeigt das Schema der experimentellen Anordnung unter Verwendung eines HPGe-Detektors. Nach einer Ausbeuteoptimierung unter Aufrechterhaltung einer mindestens 99 %igen Aerosolrückhaltung wurden für  $^{105}\text{Mo}$  ( $t_{1/2} = 35,6$  s) bei einer Chromatographiesäulentemperatur von 1300 K bis zu 70 % der in die Chromatographiesäule eingespeisten Aktivität auf den Aluminiumfolien abgeschieden.



**Abb. 4:** Isotherme On-line Hochtemperaturgaschromatographie, experimentelle Anordnung mit Direktankopplung der Chromatographie an die Detektionseinheit ROMA

Aus Ausbeutekurven, wie der in **Abb. 5** für  $^{105}\text{Mo}$  dargestellten, wurden Verweilzeiten von ca. 10 s ermittelt. Analoge Ergebnisse konnten wir am PHILIPS-Zyklotron des

PSI unter realen Bedingungen für ein Seaborgiumexperiment auch mit kurzlebigen Wolframnukliden erzielen [18].



**Abb. 5:** Isotherme On-line Hochtemperaturgaschromatographie, Temperaturfunktion der  $^{105}\text{Mo}$ -Ausbeute, experimentelle Daten und Monte Carlo Simulation

Nach Optimierung der Aerosolrückhaltung und Fermiumabtrennung wurden die für ein Seaborgiumexperiment erforderlichen Hauptkriterien erreicht, wenngleich die im Vergleich zum Oxychloridsystem zwei- bis dreifach längere Verweilzeit Experimente mit dem 21 s Nuklid  $^{266}\text{Sg}$  nahelegten, dessen Produktionsquerschnitt noch geringer als der des  $^{265}\text{Sg}$  ist. Damit entschieden wir uns für ein Experiment an der Grenze des gegenwärtig Machbaren!

Zum Zeitpunkt der Niederschrift dieses Berichtes hat die umfangreiche Auswertung des Seaborgiumexperimentes gerade erst begonnen, bereits jetzt kann aber resümiert werden, daß es mit Hilfe des U-120 gelang, die Lösung einer äußerst anspruchsvollen Aufgabenstellung der modernen Kern- und Radiochemie gründlich vorzubereiten.

Der baldige Verzicht auf dieses solide und zuverlässige Instrument wird weitere Beiträge des Instituts für Radiochemie zur Chemie der Transactinidenelemente Seaborgium und Bohrium komplizieren, wenngleich neben der Nutzung externer Beschleuniger auch die am Elektronenbeschleuniger ELBE generierten Neutronen zur Erzeugung kurzlebiger Radionuklide genutzt werden könnten. Ein Gas-Jet an der ELBE

könnte die kontinuierliche Verfügbarkeit eines breiten Spektrums kurzlebiger Radionuklide und damit die Kontinuität der Forschungen zur Chemie der schwersten Elemente in Sachsen gewährleisten!

## **Danksagung**

Für ihre Mitarbeit an den vorgestellten Arbeiten sei M. Grantz, H. Heyne, L. Salamatin, S. Taut und A. Vahle von der Projektgruppe "Chemie der schwersten Elemente" des Instituts für Radiochemie des FZR sowie M. Andrassy, S. Fischer, U. Kirbach und D. Schumann von der Forschungsgruppe Radiochemie der TU Dresden und R. Binder vom Institut für Analytische Chemie der Universität Leipzig herzlich gedankt. Dem Direktor des Instituts für Radiochemie, H. Nitsche, sei für die stetige Förderung des Forschungsvorhabens gedankt. Unser ganz besonderer Dank gilt den Mitgliedern der Seaborgium-Kollaboration R. Dressler, B. Eichler, H. W. Gäggeler, D. T. Jost, D. Piguet und A. Türler vom Laboratorium für Radio- und Umweltchemie des PSI Villigen und der Universität Bern, W. Bröchle, E. Jäger, M. Schädel und E. Schimpf von der Abteilung Kernchemie der GSI Darmstadt sowie K. Eberhardt und N. Trautmann vom Institut für Kernchemie der Universität Mainz, die durch ihre Unterstützung, Anregungen und Hinweise wesentlich zum Gelingen dieser Arbeiten beitrugen. Nicht zuletzt sind wir der gesamten Mannschaft des Zyklotrons U-120, für die stellvertretend R. Brückner und H. Guratzsch genannt seien, für den wunschgemäßen und zuverlässigen Betrieb des Beschleunigers zu Dank verpflichtet. Dankend erwähnt sei auch die Förderung der Arbeiten durch die Vorhaben 06 DR 666I(4)/1 und 06 DR 824 2 des BMBF der BRD und die Zusammenarbeitsvereinbarungen DRNIK und DRNITK mit der GSI Darmstadt.

## **Literatur**

- [1] M. Schädel, W. Bröchle, R. Dressler, B. Eichler, H. W. Gäggeler, R. Günther, K. E. Gregorich, D. C. Hoffman, S. Hübener, D. T. Jost, J. V. Kratz, W. Paulus, D. Schumann, S. Timokhin, N. Trautmann, A. Türler, G. Wirth, A. Yakushev, *Nature* 388(1997)55
- [2] M. Gärtner, M. Böttger, B. Eichler, H. W. Gäggeler, M. Grantz, S. Hübener, D. T. Jost, D. Piguet, R. Dressler, A. Türler, *Radiochim. Acta* 78(1997)59

- [3] M. Schädel, W. Brüchle, B. Schausten, E. Schimpf, E. Jäger, G. Wirth, R. Günther, J. V. Kratz, W. Paulus, A. Seibert, P. Thörle, N. Trautmann, S. Zauner, D. Schumann, M. Andrassy, R. Misiak, K. E. Gregorich, D. C. Hoffman, D. M. Lee, E. R. Sylwester, Y. Nagame, Y. Oura, *Radiochim. Acta* 77(1997)149
- [4] S. Hübener et al, in Vorbereitung
- [5] B. Eichler, V.P. Domanov, *J. Radioanal. Chem.* 28(1975)143
- [6] B. Eichler, S. Hübener, Forschungszentrum Rossendorf, Institut für Radiochemie, Jahresbericht 1991, FZR 92-08(1992)74
- [7] V. Pershina, *Chem. Rev.* 96(1996)1977-2010 und Privatmitteilung
- [8] B. Bayar, A. F. Novgorodov, I. Vocilka, N. G. Zaitseva, *Radiochem. Radioanal. Letters* 22(1975)53
- [9] B. Bayar, A. F. Novgorodov, I. Vocilka, N. G. Zaitseva, *Radiochem. Radioanal. Letters* 35(1978)109
- [10] U. Becker, Dissertation, Universität Mainz 1994
- [11] A. Vahle, Dissertation, TU Dresden 1996
- [12] A. Vahle, S. Hübener, B. Eichler, *Radiochim. Acta* 69(1995)233
- [13] A. Vahle, , S. Hübener, R. Dressler, B. Eichler, A. Türler, *Radiochim. Acta* 78(1997)53
- [14] I. Zvara, A. B. Yakushev, S. N. Timokhin, Xu Honggui, V. P. Pereygin, Yu. T. Chuburkov, Dubna Report E12-97-102 (1997)
- [15] H. W. Gäggeler, *Proc. Int. Conf. Actinides 97*, Baden-Baden, 21-26 Sept. 1997; to be published in *J. Alloys and Compounds*
- [16] S. Hübener, H. Heyne, G. Hüttig, A. Ross, R. Brückner, H. Guratzsch, S. Fischer, R. Binder, Forschungszentrum Rossendorf, Institut für Radiochemie, Jahresbericht 1993, FZR-43 (1994)55
- [17] D. Schumann, M. Andrassy, H. Nitsche, S. Hübener, M. Grantz, S. Taut, R. Brückner, H. Guratzsch, Forschungszentrum Rossendorf, Institut für Radiochemie, Jahresbericht 1995, FZR-123 (1996)106
- [18] S. Hübener, M. Grantz, L. Salamatin, A. Vahle, D.T. Jost, A. Türler, Forschungszentrum Rossendorf, Institut für Radiochemie, Jahresbericht 1997, FZR-218 (1998)87

## Herstellung kurzlebiger Radionuklide für Radiotraceruntersuchungen

H. Kupsch

Universität Leipzig, Fakultät für Physik und Geowissenschaften

Institut für Geophysik und Geologie, Permoserstr. 15, 04318 Leipzig, Tel./Fax: 235 2287

Für Radiotraceranwendungen in der Industrie, Medizin und Umweltgeologie wurden am Rossendorfer Zyklotron U-120 solche kurzlebigen Radionuklide, wie beispielsweise F-18, Sc-43 und Y-87/Sr-87m, hergestellt und in der Universität Leipzig bzw. in verschiedenen Anlagen der Industrie des Ballungsgebietes Halle - Leipzig gehandhabt.

Nr.	Kernreaktion	Häufigkeit des Targetnuklids (%)in	TTY ( MBq/μAh)
1	$^{15}\text{N} (\alpha, n) ^{18}\text{F}$	96,4	670
2	$^{18}\text{O} (p, n) ^{18}\text{F}$	63,5	870
3	$^{20}\text{Ne} (d, \alpha) ^{18}\text{F}$	90,9	640
4	$^{40}\text{Ca} (\alpha, n) ^{43}\text{Ti} \rightarrow ^{43}\text{Sc}$	96,9	110 ( $\Sigma$ Rkt 4 + 5)
5	$^{40}\text{Ca} (\alpha, p) ^{43}\text{Sc}$	96,9	110 ( $\Sigma$ Rkt 4 + 5)
6	$^{85}\text{Rb} (\alpha, 2n) ^{87}\text{Y} \rightarrow ^{87\text{m}}\text{Sr}$	72,2	2,4

Tab. 1: Kernreaktionen für die Radionuklidproduktion am U-120

Bei der F-18-Herstellung kamen zwei verschiedene Techniken für Gastargets (Ampullen und Strömungstargets) unter Nutzung von (p,n)-, (d, $\alpha$ )- und ( $\alpha$ ,n)-Reaktionen (Nr. 1 -3 in Tab. 1) zum Einsatz. Quarz-Ampullen, die einen Innendurchmesser von  $\geq 25$  mm hatten, wurden mit einem Eintrittsfenster (10  $\mu\text{m}$  Ni-Folie) versehen und mit dem jeweiligen Targetgas (N-15: 96,4%, O-18: 63,5 %, Ne-20: 90,9 %) mit einem Druck von 93,5 kPa gefüllt. Bei der Ermittlung der Sättigungsausbeuten von dünnen und dicken Targets wurden deren innere Oberfläche mit einer dünnen NaCl-Phase beschichtet, um Ausbeuteverluste zu unterbinden. Die experimentell bestimmten Ausbeuten dicker Targets (TTY) sind in der Tabelle 1 dargestellt. Für die Erzeugung von elektrolytfreiem  $^{18}\text{F}^-$  wurden andererseits die Ampullen nach Bestrahlungsende nur mit destilliertem Wasser eluiert. Das war für Radiotracerexperimente zur anodischen Oxydation von Siliciumgrenzflächen die einzig anwendbare Methode zur schnellen Herstellung des elektrolytfreien radionuklidisch reinen Radiotracers (*Mende 1988*).

Der Gebrauch von Strömungstargets ermöglichte bei laufender Kernreaktion das anteilige Heraustransportieren des F-18. Die F-18-Abscheidung erfolgte auf Kernspurfilter via KCl-Cluste-Jet, dem 2  $\mu\text{g}/\text{dm}^3$   $\text{NH}_3$  zudosiert wurden (*Kupsch 1989*).

Zur Sc-43 - Produktion wurde eine Targettechnik für amorphe und kristalline Pulver unter Nutzung von ( $\alpha$ ,n)- und ( $\alpha$ ,p)-Reaktionen (Nr. 4 und 5 in Tab. 1) verwendet. In dieser Vorrichtung können ringförmige, rotierende Targetbehälter, deren 20  $\mu\text{m}$  Al-Fensterfolie gekühlt wird, am aus dem U-120 ausgeführten Teilchenstrahl bestrahlt werden. Verschiedene

Calciumverbindungen wurden auf ihre Brauchbarkeit zur Herstellung pulverförmiger kurzlebiger Radiotracer für Untersuchungen in der baustoffproduzierenden Industrie getestet und die Ausbeuten der dicken Targets bestimmt (Tab. 2).

Verbindung	Calciumanteil (%)	TTY (MBq/ $\mu$ Ah)
Calciumsulfat		
CaSO <sub>4</sub> * 2 H <sub>2</sub> O	23,3	51,0 $\pm$ 5,4
CaSO <sub>4</sub> * ½ H <sub>2</sub> O	27,6	54,0 $\pm$ 3,2
Calciumoxalat	27,4	51,7 $\pm$ 2,3
Calciumformiat	30,8	56,5 $\pm$ 6,3
Calciumcarbonat	40,0	64,8 $\pm$ 4,5
Calciumoxid	71,5	91,0 $\pm$ 5,9

Tab. 2: Sc-43-Ausbeuten dicker Targets verschiedener Calciumverbindungen bei der Aktivierung von pulverförmiger Substanzen am ausgeführten  $\alpha$ -Teilchenstrahl ( $E_{\alpha} = 22,7$  MeV) am U-120

Für eine schnelle radiochemische Abtrennung von trägerfreiem  $^{43}\text{Sc}^{+++}$  aus den Targetsubstanzen ist das Calciumcarbonat am geeignetsten. Folgende Trennmethode wurde entwickelt:

Nach Bestrahlungsende wird das Calciumcarbonat in Salzsäure gelöst. Das trägerfreie Sc-43 befindet sich in dieser Lösung in Anwesenheit eines Überschusses von Calciumionen. Bei allen Radiotracerexperimenten, bei denen dieser hohe Calciumelektrolytanteil stört, wird eine extraktive Abtrennung des Sc-43 mit Tributylphosphat (TBP), das für die Ca/Sc-Trennung aus einer konzentrierten Salzsäure einen Trennfaktor von  $\alpha = 2 \times 10^{-5}$  aufweist, sinnvoll. Es wurde folgende extraktionschromatographische Sc-43-Abtrennung entwickelt und genutzt:

- Präparation von Tributylphosphat (100 %) auf Kieselgel oder Teflonpulver mit einer jeweiligen Korngröße von 0,2 bis 0,6 mm
- Füllen einer Säule mit dem TBP-beladenen Kieselgel
- Lösen des aktivierten Calciumcarbonats in 30 ml 12N HCl
- Aufgeben dieser Sc-43-Lösung auf die Trennsäule, die sich in einem Pb-Abschirmbehälter befindet, mit einer Tropfgeschwindigkeit von 1 ml min<sup>-1</sup>. Das Sc-43 verbleibt vollständig in der stationären TBP-Phase
- Spülen mit 2 ml 12N HCl
- Elution des Sc-43 mit 20 ml 0,1N HCl mit einer Tropfgeschwindigkeit von 1 ml min<sup>-1</sup>.

Die gleiche Targettechnik zur Bestrahlung von amorphen und kristallinen Substanzen wurde zur Herstellung des Y-87/Sr-87m-Radionuklidgenerators unter Nutzung der ( $\alpha,2n$ )- Reaktion (Nr. 6 in Tab. 1) eingesetzt. Es wurden die Ausbeuten von dicken Targets bestimmt und

Methoden zur radiochemischen Isolierung der Radionulide entwickelt und angewendet. Die Experimente mit RbCl-Targets innerhalb des Vakuumsystems des Zyklotron U-120 belegten, daß die auftretenden Ausbeuteverluste im Zusammenhang mit den verwendeten Schichtdicken der RbCl-Glasuren stehen (Tab. 3). Kleine Schichtdicken der Targetsubstanz erfüllen nicht die Bedingungen eines dicken Targets. Zu große Schichtdicken des Rubidiumchlorids führen auf Grund des schlechten Wärmeleitvermögens der Substanz zu Ausbeuteverlusten durch Verdampfungen der Targetsubstanz.

$E_\alpha$ (MeV)	RbCl-Target (g cm <sup>-2</sup> )	Y-87m-Elution von Targetplatte	Y-87m-Ausbeute(EOB) (MBq/μ Ah)
27	2,8 x 10 <sup>-2</sup>	-	1,49 x 10 <sup>0</sup>
		0,1N HCl	1,25 x 10 <sup>0</sup>
		6,0N HCl	0,24 x 10 <sup>0</sup>
27	1,5 x 10 <sup>-1</sup>	-	1,95 x 10 <sup>-1</sup>
		H <sub>2</sub> O	7,00 x 10 <sup>-3</sup>
		0,1N HCl	1,88 x 10 <sup>-1</sup>

Tab. 3: Abhängigkeit der Y-87m-Ausbeute von der Schichtdicke des Rubidiumchlorids

Zur Vermeidung von Ausbeuteverlusten durch Verdampfen oder Schmelzen der Targetsubstanz wurden Targettechniken außerhalb des Vakuumsystems des Zyklotrons getestet. Der α-Teilchenstrahl wurde über ein metallisches Austrittsfenster (V2A, 20 μm) am

RbCl-Target	Y-87m-Ausbeute bei EOB (MBq/ μ Ah)	Y-87g-Ausbeute bei 40,6 h nach EOB (MBq/ μ Ah)	Y-88-Ausbeute (MBq/ μ Ah)
<b>Tablette</b>	$\bar{x}$ 10,51	$\bar{x}$ 1,20	$\bar{x}$ 1,99x10 <sup>-2</sup>
	$\sigma_{n-1}$ 1,96	$\sigma_{n-1}$ 0,23	$\sigma_{n-1}$ 3,75x10 <sup>-3</sup>
	n 4	n 4	n 4
<b>Pulver- target</b>	$\bar{x}$ 21,08	$\bar{x}$ 2,38	$\bar{x}$ 3,95x10 <sup>-2</sup>
	$\sigma_{n-1}$ 3,29	$\sigma_{n-1}$ 0,37	$\sigma_{n-1}$ 6,17x10 <sup>-3</sup>
	n 4	n 4	n 4

Tab 4. Abhängigkeit der Y-87-Ausbeuten von der verwendeten Targettechnik bei  $E_\alpha = 22,7$  MeV

Zyklotron durch einen 30 mm Luftspalt über ein metallisches Eintrittsfenster (Al, 20  $\mu\text{m}$ ) in das zu testende RbCl-Target geführt. Die Berechnung der Energiedegradation der  $\alpha$ -Teilchen, die bei ihren Wechselwirkungen mit den Nukliden der Austrittsfenster-, der Luftspalt- und der Eintrittsfenstermoleküle erfolgt, wurde nach der Bethe-Williamson-Gleichung durchgeführt. In der Tabelle 4 sind die TTY-Ausbeuten von Aktivierungen mit  $\alpha$ -Teilchen zusammengestellt. Es kamen gemäß Abbildung 1 luft- und wassergekühlte RbCl-Tabletten mit Flächendichten von  $1,5 \text{ g cm}^{-2}$  und luftgekühlte Pulvertargets zur Anwendung. Der in den Tabletten (Abb. 1/A) auftretende Wärmestau führte zum Schmelzen der Targets substanz und somit zu Ausbeuteverlusten. In den Pulvertargets (Abb. 1/B) erfolgte dagegen die Wärmeabfuhr optimal, so daß es weder zu Dichteänderungen der Substanz in der Bestrahlungszone noch zu Veränderungen der Löslichkeiten der Verbindungen kam. Durch Auflösen des RbCl in 50 ml 0,1 N HCl konnten die gebildeten yttriumfreien Trägerisotope direkt auf die stationäre HDEHP-Phase einer extraktionschromatographischen Generator-Kolonnen aufgetragen werden. Das inaktive RbCl wurde nach Eindampfen der Lösung für die erneute Bestrahlung zurückgewonnen.

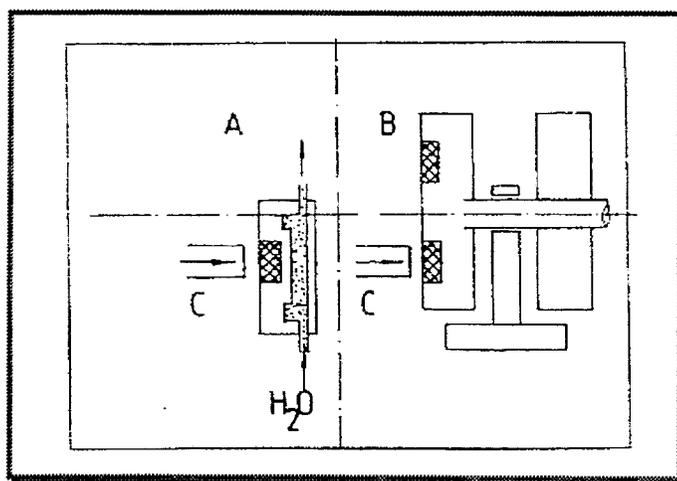


Abb. 1: Schema zweier Targetanordnungen zur Bestrahlung amorpher und kristalliner Substanzen am Zyklotron U-120  
 A: Tabletentarget; B: Rotierendes Pulvertarget; C: Strahlaustritt U-120

Derartig hergestellte Radiotracer wurden zur Prozeßoptimierung des Calsilox-Verfahrens in der Porenbetonherstellung und der Spannbetonrohrproduktion von Trinkwasserleitungen eingesetzt (Könnecke 1989, Kupsch 1990). Zur Herstellung kurzlebiger pulverförmiger Radiotracer von einzelnen Substanzen der Baustoffherstellung mit einer Aktivität von 1,5 GBq Sc-43 wurden Probemengen von 50 bis 100 g in einem rotierenden Pulvertarget am ausgeführten  $\alpha$ -Strahl (Abb. 1/B) für die Dauer von 16 bis 24 Stunden am Zyklotron U-120 bestrahlt. Diese Radiotracer wurden zur tracertechnischen Optimierung einzelner Prozeßstufen der Misch-, Treib- oder Verdichtungsvorgänge eingesetzt. Eine Verfahrensentwicklung zur hydrothermalen Kalkinjektion in den Naßmischprozeß konnte getätigt werden, nachdem über Verweilzeitmessungen und über autoradiographische Verteilungsmessungen von Kalk im Porenbeton gezeigt werden konnte, daß nach der herkömmlichen Technologie Kalkagglomerate gebildet werden. Einige Rohstoffe in der Baustoffproduktion, wie z.B. Aluminiumpulver, das als Treibmittel in der Porenbetonherstellung verwendet wird, können nicht durch Aktivierungstechniken in einen kurzlebigen Radiotracer umgewandelt werden.

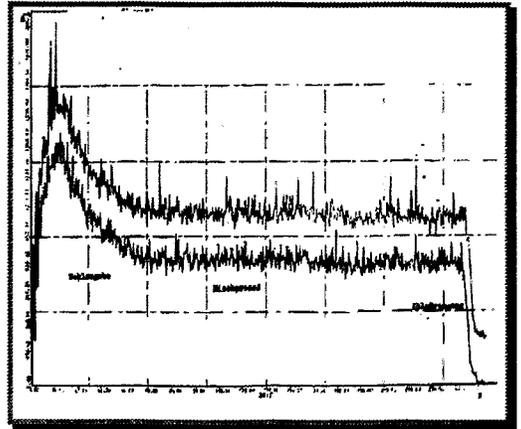
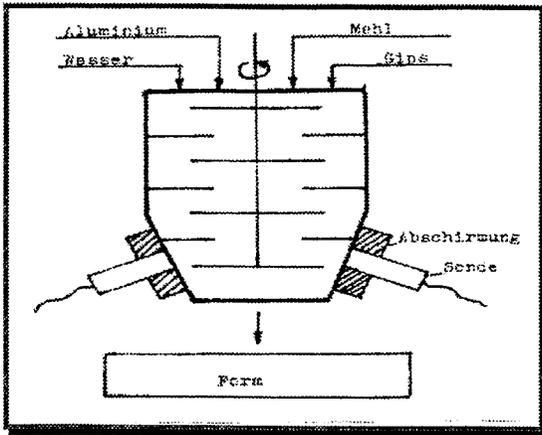


Abb. 2: Schema der Meßsondenpositionierung an einem Naßmischer (links)  
Abhängigkeit der Impulsraten von der Mischdauer zweier Einzelkomponenten (rechts)

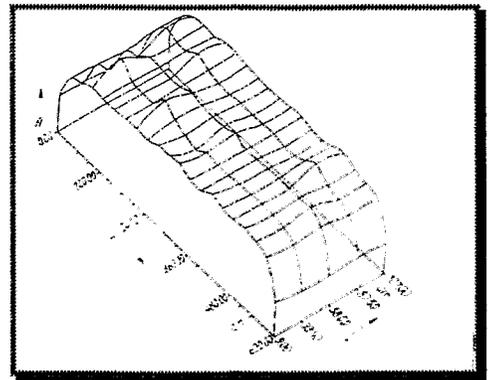
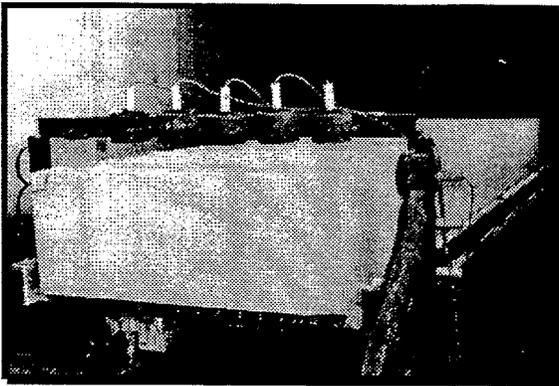


Abb. 3: Meßanordnung bei der Scanmessung von Aktivitätsprofilen an Gasbetonblöcken (links)  
Aktivitätsprofil eines markierten Gasbetonblockes; Markierte Komponente Kalk (rechts)

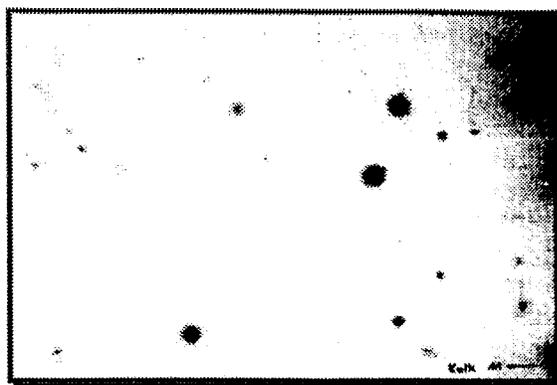


Abb. 4: Autoradiogramm eines markierten Gasbetonziegels, der Kalkagglomerate enthält; Markierte Komponente Kalk

Mittels komplexchemischer Markierung mit F-18 gelangen Oberflächenmarkierungen der Al-Partikeloberflächen. Die Markierung von Partikeloberflächen zur korngößenabhängigen Verweilzeitmessung verschiedener Feststoffe wurde mit dem trägerfreien Sc-43 realisiert.

Zur Vermessung der Einbaurrate von Knochentransplantaten und zur Prüfung von „trockenen“ Clusterjetaerosolen bei Lungenventilationsmessungen kam das F-18 in Tierversuchen zum nuklearmedizinischen Gebrauch. Das metabolische Verhalten von trägerfreiem  $^{18}\text{F}^-$  in verschiedenen Organen von Schweinen wurde gemäß Abb. 5 mit der on-line Meßtechnik verfolgt; während die Aktivität der Knochentransplantate tomographisch oder autoradiographisch vermessen wurde.

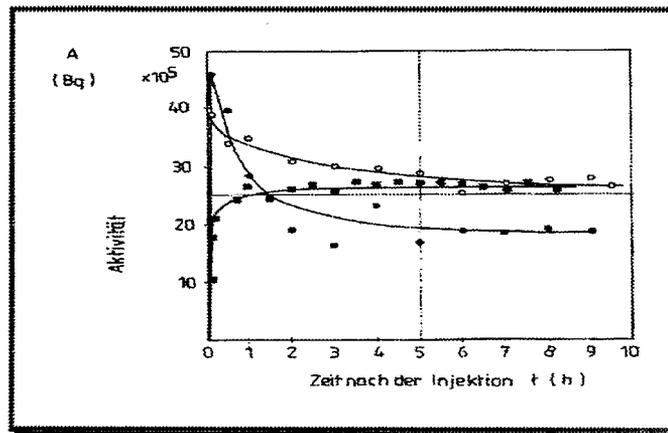


Abb. 5: Darstellung des metabolischen Verhaltens von trägerfreiem  $^{18}\text{F}^-$  in verschiedenen Organen eines Schweines  
 ■ Knochen ○ Kieferknochen ● Muskulatur

In georadiochemischen Experimenten wurden die trägerfreien kurzlebigen Radionuklide zur Markierung von Inhaltsstoffen des Dissolved Organic Carbon (DOC) zur Klärung geochemischer Problemstellungen genutzt (Kupsch 1997). Zur Schwermetallspeziation von DOC-Species werden trägerfreie Radionuklide für Untersuchungen von zwei-, drei- und vierwertigen Metallionen in geochemischen Systemen, die hier im Picomol-Bereich wechselwirken, benötigt. Das Sr-87m und das Sc-43 sind dabei wichtige Radiotracer. Neben dem Br-77 wird das F-18 zur Markierung der reaktiven Kohlenstoffverbindungen des DOC genutzt.

#### Literatur:

Mende, G., Flietner, H. Kupsch, H., Schulze, D., (1988): Verfahren zur Passivierung von Siliciumbauelementen, ZFK-Bericht; Patent

Könnecke, H.-G., Heller, W., Kupsch, H. (1989): Untersuchungen mit Radionukliden an Kraftfeldprozessen, Chem.-Ing.-Tech. 61 (1989) Nr. 11, S. 902-903

- Kupsch, H. (1989): Kurzlebige Radionuklide für Radiotraceruntersuchungen zur Prozeßoptimierung in der Industrie, Dissertation B, Leipzig (1989), ZFI-Mittlg. 162 (1990), S. 1-142
- Kupsch, H., Könnecke, H.-G. (1990): Die Anwendung von Radionukliden zur Lösung verfahrenstechnischer Probleme, Chem. Techn. 42. Jg., Heft 7, S. 278-284
- Kupsch, H. (1997): Die Sequentielle Chromatographie - eine neue Methode zur Metallspeciation in geochemischen Systemen, Materialien zu Strahlenschutz und Umweltradioaktivität 1997, 115 - 129, Tagungsband zum Workshop *Qualitätssicherung bei der Modellierung mit thermodynamischen Datensätzen natürlicher Radionuklide* vom 11. November 1996
- Kupsch, H. (1997): Geochemische Zustandsänderungen in Abhängigkeit von der Haldenabdeckung am Beispiel des Schlemmer Reviers, Materialien zu Strahlenschutz und Umweltradioaktivität 1997, 1 - 22, Tagungsband zum Workshop *Sanierung der Hinterlassenschaften des Uranbergbaus, Teil II: Abdeckung von Halden des Uranerzbergbaus* vom 10. April 1997

## **Dünnschichtaktivierung - eine effiziente Methode für neuartige Verschleißanalysen**

Autoren: Prof. Dr.-Ing. habil. Siegfried Bludszuweit, MET GmbH Rostock  
Dipl.-Ing. Jörg Schwarte, MET GmbH Rostock  
Dr.-Ing. Klaus Eichhorn, VKTA Rossendorf e.V.

### **1. Einleitung**

Die zunehmende Verkürzung von Produktentwicklungszeiten, die ständig steigenden Anforderungen an immer höhere Qualitätsstandards sowie der harte Kostendruck zwingen Entwickler von technischen Produkten, schnell und zuverlässig Informationen über ihr eigenes Produkt zu gewinnen. Der Verschleiß ist dabei eine der zentralen Kenngrößen für die Qualität von Produkten bei denen Materialabtrag auftreten kann. Je kürzer nun die Prüfzeiten für eine exakte Bestimmung solcher Materialabträge durch Verschleiß sind, desto effizienter lässt sich die Produktentwicklung gestalten.

Eine Verschleißmessung mittels Radionuklid-Verfahren, also beispielsweise durch Dünnschichtaktivierung, kann hier eingreifen, um innerhalb kürzester Prüfzeiten zuverlässig Informationen zum Verschleißverhalten von tribologischen Systemen zu liefern, ohne das betreffende System durch die Messung zu stören.

Die Dünnschichtaktivierung ist ein am Zyklotron in Rossendorf seit den 60er-Jahren erprobtes Verfahren. Spezielle Methoden dieser Radionuklid-Verschleißmessung sind die Durchflussmethode und das Dünnschicht-Differenz-Verfahren, wobei sehr gute Erfahrungen mit dem Dünnschicht-Differenz-Verfahren gemacht wurden.

In den 80er-Jahren wurde seitens des Zyklotrons mit einer systematischen Beratung der Anwender begonnen und 1983 wurde am Zyklotron die erste Zusammenkunft der Anwender der Dünnschichtaktivierung ins Leben gerufen. Eine Art des Erfahrungsaustausches, die sich bis heute (13. Kolloquium im Jahre 1996) erhalten hat.

### **2. Ständig wachsende Anforderungen an die Aktivierungen am Zyklotron**

So wie das Wechselspiel zwischen Wunsch und Möglichkeit bei der Aufgabenbewältigung im Bereich der Kernstrukturforschung, in den Anfangsjahren auf dem Sektor der Strahlenbiologie, der Biophysik und Chemie, so hat auch die Dünnschichtaktivierung mit ihren Besonderheiten ihren fördernden Einfluss auf die Entwicklung des Zyklotrons und dessen peripherer Technik geltend gemacht. Dass beispielsweise heute ein Vielkanalanalysator mit modernster Hard- und Software am Zyklotron zur Verfügung steht, dürfte nach unserem Ermessen auf die Forderungen der Dünnschichtaktivierung zurückzuführen sein.

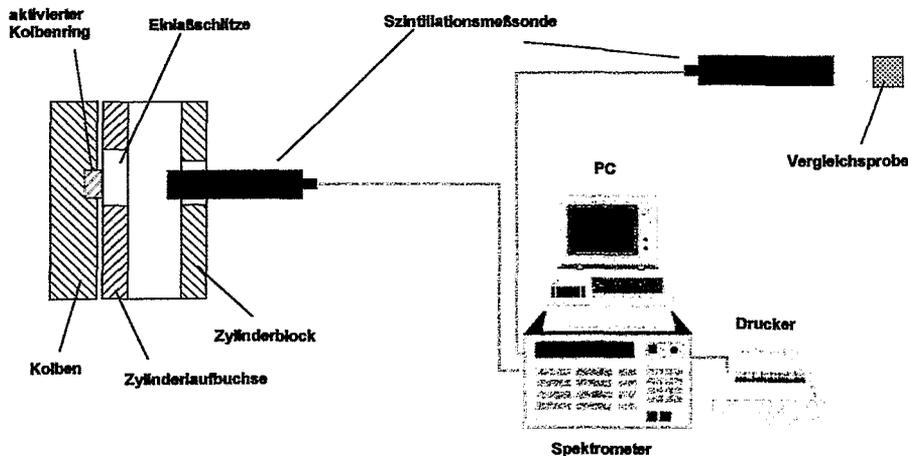
Die Bemühungen der Mannschaft des Zyklotrons, den ständig wachsenden Anforderungen an Aktivierungen mit immer geringerer Aktivierungstiefe oder homogener Aktivitätsverteilung zu genügen, sind vielschichtig. Sie sind insbesondere durch den Einsatz von modernen Halte- und Antriebssystemen für die zu aktivierenden Teile, wie Schrittmotorsteuerungen und Präzisionsjustiervorrichtungen, sowie genauer Strahlstrom- und Strahlverteilungsmesstechnik gekennzeichnet.

Die 40-jährige Erfahrung beim Betrieb der Maschine und bei der Durchführung von Aktivierungen ist ein Garant für eine qualitätsgerechte Aktivierung aller Verschleißteile am Zyklotron und schließlich auch Grundlage zur präzisen Bestimmung von Verschleißparametern bei den Anwendern.

### 3. Beispiel einer Verschleißanalyse mittels Dünnschichtaktivierung

Mittels Dünnschichtaktivierung sind in der Vergangenheit eine ganze Reihe von Materialtransportuntersuchungen am Zyklotron durchgeführt worden; hier seien beispielsweise auch Kavitations- und Korrosionsuntersuchungen genannt. Eine besonders interessante Anwendung der Dünnschichtaktivierung ist die Bestimmung des Materialabtrages durch Verschleiß. Das Prinzip des Verfahrens besteht in der Aktivierung von Oberflächen (Erzeugung von radioaktiven Nukliden in dünnen Oberflächenschichten), die dem Verschleiß ausgesetzt sind. Wird die Oberfläche mechanisch abgetragen und damit auch das abgearbeitete radioaktive Material entfernt, sinkt die Strahlungsintensität des Bauteiles am betrachteten Ort. Bei Kenntnis der Intensitätsverteilung innerhalb des Bauteiles kann aus der gemessenen Strahlungsintensität und einer zu bestimmenden Kalibrierfunktion auf die Größe des Abtrages geschlossen werden.

**Bild 1** zeigt schematisch eine Messanordnung zur Verschleißanalyse am Beispiel der Reibpartner Zylinderlaufbuchse  $\leftrightarrow$  Kolbenring.



**Bild 1:** Messanordnung für Verschleißanalyse mit Dünnschichtaktivierung am Beispiel Zylinderlaufbuchse  $\leftrightarrow$  Kolbenring.

Als Vorteile dieses Messverfahrens sind anzusehen:

- hochempfindlich bei hoher Messgenauigkeit
- charakteristische Verschleißbewertung bei kurzer Betriebszeit möglich
- berührunglos und demontagelos
- keine Beeinflussung des tribologischen Systems
- Parallelmessung an verschiedenen Bauteilen in einem Motor- bzw. Anlagenlauf
- Verschleißbestimmung an Bauteilen, die einem direkten Zugang verschlossen sind
- unabhängig von der Oberflächengeometrie und der Verschleißform

Typische Verschleißteile, die mit dieser Messmethode untersucht werden, stellen Kolbenringe, Laufbuchsen, Kolbenringnuten, Ein- und Auslassventile und Lager dar.

Die Messungen finden, insbesondere für die Anwendung der Verschleißbestimmung an Großdieselmotoren, im abgeschalteten Zustand des Motors statt. Eine Neuentwicklung stellt die Online-Messung dar.

Für sehr schnelle Verschleißvorgänge sind vor allem die ersten Betriebsstunden eines Motors von Interesse, in denen bekanntlich das Einlaufen der tribologischen Paarungen stattfindet. Aus hauptsächlich diesem Grunde wurde eine entsprechende Weiterentwicklung des bestehenden Systems vorgenommen, um Online-Messwerte zu erhalten und auszuwerten. Hierfür waren Anpassungen und Änderungen notwendig an

- den Sondenhalterungen mit integrierter Kühlung,
- der Messwerterfassung und
- der Messwertauswertung.

Die Online-Messung wurde erfolgreich auf Prüfständen und auf Schiffen an Zweitakt-Großdieselmotoren eingesetzt. Vor dem Hintergrund der sehr hohen Prüfstandskosten ist die extrem schnelle Erfassung des Verschleißes in Abhängigkeit von Betriebsparametern, Ausführung und Schmieröl bzw. Schmierölzusatz von besonderem Interesse.

Das folgende Beispiel stellt die online und stationäre Verschleißmessung an Kolbenringen eines Zweitakt-Großdieselmotors vom Typ 7RTA62U dar. Ziel der Untersuchungen war es, den Einfluss von Zylinderöladdivitiven auf den Einlaufverschleiß zu ermitteln. Die Untersuchungen wurden parallel zum üblichen Werk- und Prüflauf des Serienmotors durchgeführt, d.h. es musste innerhalb einer Betriebszeit von ca. 30h eine signifikante Aussage zu zwei Additiven in unterschiedlichen Konzentrationen getroffen werden.

Die Messwerterfassung erfolgte in einem Intervall von drei Minuten während des Betriebes und zusätzlich stationär im abgestellten Zustand des Motors.

In Bild 2 sind die aufbereiteten Messergebnisse dargestellt. Es ist klar erkennbar, dass die Zylinderöladdivitive einen signifikanten Einfluss auf den Verschleiß der Paarung Laufbuchse - Kolbenring haben. Bei jeder Änderung der Konzentration bzw. des Typs des Additivs ist die Auswirkung auf den Verschleißverlauf deutlich zu erkennen.

Die Messergebnisse konnten durch visuelle Untersuchungen an der Laufbuchsen- und der Ringlauffläche bestätigt werden.

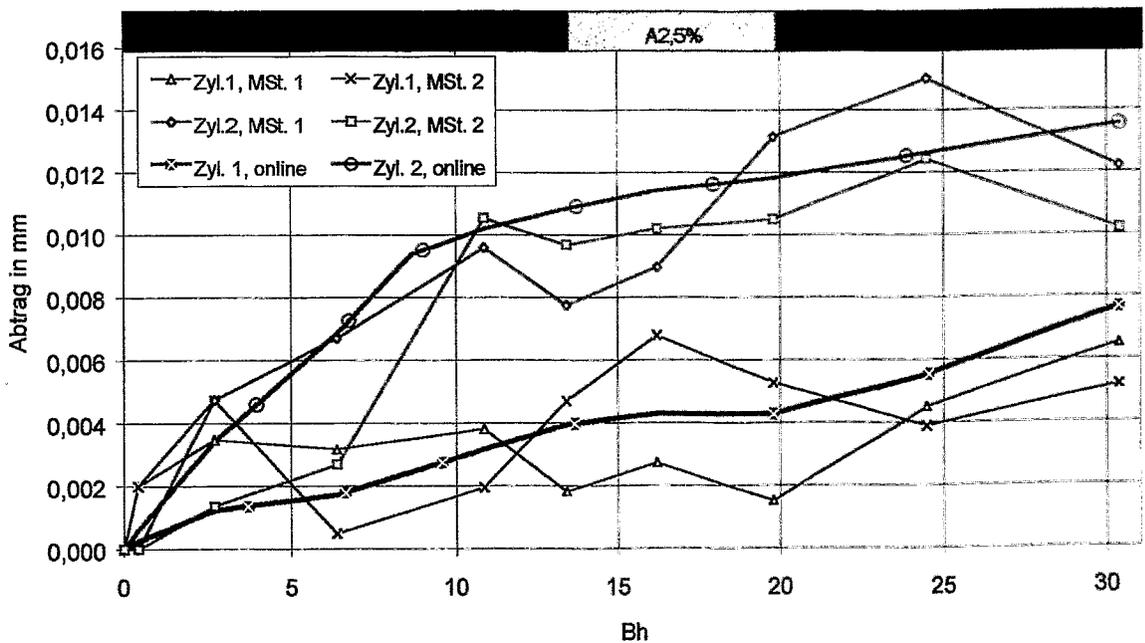


Bild 2: Verschleiß am Kolbenring von zwei Zylinderstationen in Abhängigkeit von Zylinderölzusätzen und der Betriebszeit

#### **4. Zusammenfassung**

Die Dünnschichtaktivierung an Motorenbauteilen ist die Voraussetzung zur Anwendung von entwickelten Verfahren zur hochempfindlichen und präzisen Erfassung von Verschleißvorgängen in Verbrennungsmotoren. Die Anwendung dieser Methode ist jedoch bei weitem nicht auf Verbrennungsmotoren beschränkt.

Zur Absicherung einer zuverlässigen und genauen Messung werden hohe Anforderungen an die Aktivierung des betroffenen Bauteils gestellt. Neben der homogenen Aktivitätsverteilung sind weitere Informationen zur Tiefenverteilung der Aktivität mit hoher Präzision notwendig.

Die Verschleißmessung an Bauteilen moderner Großdieselmotoren zeigt das Potential dieses Verfahrens auf. Das Verfahren ist bezüglich Empfindlichkeit und Genauigkeit konkurrenzlos. So ist es innerhalb extrem kurzer Betriebszeit möglich, Aussagen zum Einfluss von Betriebsparametern, Schmierungsbedingungen und konstruktiven Ausführungen der betrachteten Bauteile zu erhalten. Das bedeutet eine signifikante Reduzierung der Aufwendungen und damit Kosten. Eine gleichzeitige Messung an verschiedenen Ausführungsformen erlaubt einen exakten Vergleich bei identischen Belastungsbedingungen wobei auch die Aufwendungen noch weiter reduziert werden können.

Die herausragenden Eigenschaften haben die industrielle Anwendung des Dünnschicht-Differenz-Verfahrens beschleunigt. Dank der Aktivierungen am Zyklotron hat sich das Messverfahren zu einem Standardwerkzeug für die effiziente Bewertung von innovativen Produkt- und Technologieentwicklungen hervor getan.

# Erzeugung und Beschleunigung von $\text{Li}^{3+}$ -Ionen am Rossendorfer Zyklotron U-120

Jürgen Dietrich

Forschungszentrum Jülich GmbH, Institut für Kernphysik, D-52425 Jülich

Das 1958 in Betrieb genommene Zyklotron U-120 ist ein Festfrequenzzyklotron zur Beschleunigung von leichten Ionen mit einem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis  $A/Z=2$ . Mitte der 70er Jahre bestand der Wunsch von Seiten der Kernspektroskopie, Lithiumionen mit einer Energie größer 5 MeV/Nukleon zu beschleunigen. Entsprechende Erfahrungen mit geeigneten Ionenquellen gab es damals nur in Karlsruhe und Moskau. Die Ionen wurden dabei mit Penning-Ionenquellen, die intern oder extern angeordnet waren, erzeugt. Der Variationsbereich des magnetischen Feldes und der Frequenz der Beschleunigungsspannung am Rossendorfer Zyklotron ermöglichte es, die Resonanzbedingung für  $\text{Li}^{1+}$ - und  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen zu erfüllen. Um die für kernphysikalische Experimente erforderliche Energie zu erreichen, mußten  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen erzeugt und beschleunigt werden. Voraussetzung für eine Ionenquellenentwicklung am Rossendorfer Zyklotron war der Aufbau einer Ionenquellenschleuse am Zyklotron selbst und der Aufbau eines separaten Ionenquellenteststandes Ende der 70er Jahre.

Am Rossendorfer Zyklotron wird eine interne Penning-Ionenquelle verwendet. Mit diesem Ionenquellentyp können Lithiumionen erzeugt werden, wobei die Methode der Metallverdampfung [1] und die Sputterung aus festen Lithiumverbindungen [2] zur Anwendung kommen. Die Ionenausbeute der Penning-Ionenquelle ist von der Bogenspannung, dem Bogenstrom, der Temperatur der Glühkathode und dem Gasdruck im Entladungsraum abhängig. Die zur Erzeugung eines bestimmten Ladungszustandes notwendige Bogenspannung errechnet sich aus der Abhängigkeit des Ionisationswirkungsquerschnitts von der Energie der Stoßelektronen. Die optimale Bogenspannung ergibt sich aus der kinetischen Energie der Stoßelektronen, bei der der Ionisationswirkungsquerschnitt ein Maximum aufweist; für  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen beträgt die optimale Bogenspannung 330 V. Der Betrieb der vorhandenen Penning-Ionenquelle wird bei ungepulster Bogenspannung größer 250 V instabil. Durch Einsatz einer Impulsbogenspannungsquelle konnte eine stabile Arbeitsweise der Penning-Ionenquelle bis zu 400 V gewährleistet werden.

## Penning-Ionenquelle mit Verdampfer

Zur Erzeugung der Lithiumionen durch Ionisierung von Lithiumdampf wurde an der Entladungskammer (Anode) der Ionenquelle ein Behälter (Verdampfer) zur Aufnahme des metallischen Lithiums angebracht. Auf Grund des Ionenbahnverlaufes im Zyklotronzentrum war die Anordnung des Verdampfers nur in horizontaler Lage unterhalb der Mittelebene oder in vertikaler Lage sehr dicht an der Entladungskammer möglich. Letztere Anordnung wurde gewählt, weil dabei ein besserer Wärmekontakt zum Entladungskanal erreicht worden ist und auf eine zusätzliche äußere Heizung verzichtet werden konnte. Der Verdampfer ist durch einen Kanal mit dem Entladungskanal verbunden. Entladungskanal und Verdampfer werden bei der Verdampfungstemperatur von Lithium betrieben (800 K bei 1,3 Pa). In Abb.1 ist die Ionenquelle mit Verdampfer dargestellt. Der Verdampfer faßt 2 cm<sup>3</sup> metallisches Lithium (1 g); diese Menge ist ausreichend für eine Betriebsdauer der Ionenquelle von 8 - 10 Stunden. Der für die Erzeugung von  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen erforderliche Arbeitspunkt (Bogenspannung und Bogenstrom) der Ionenquelle wird durch Drosselung der zugeführten Gasmenge (Wasserstoff), mit der die Ionenquelle betrieben wird, erreicht. Die Einstellung der Verdampfer- und Entladungsraumtemperatur, wesentlich für einen konstanten Lithiumdampfstrom, erfolgen durch Regelung der Leistung der Bogenentladung, indem die Impulsbreite der Bogenspannung verändert wird.

Mit dieser Ionenquelle wurden  ${}^6\text{Li}^{3+}$ -Ionenströme von 50-100 nA aus dem Zyklotron extrahiert.

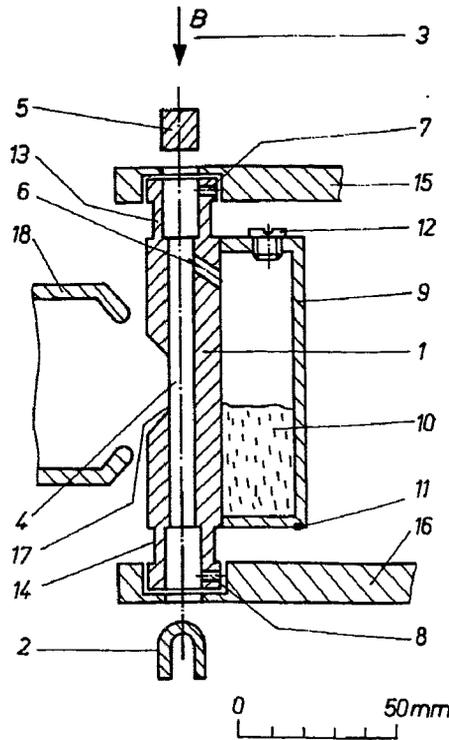


Abb.1 Penning-Ionenquelle mit Verdampfer

1-Anode, 2-Kathode, 3-Induktion des magnetischen Feldes, 4-Entladungsraum, 5-Antikathode, 6-Kanal, 7,8-Gaszuführung, 9-Verdampfer, 10-Lithium, 11-Thermoelement, 12-verschraubbare Öffnung, 13,14-Materialschwächungen, 15,16-Befestigung der Anode, 17-Emissionsschlitz, 18-Extraktionselektrode

### Penning-Ionenquelle mit Sputterelektrode

Bei einer im Zentrum des Zyklotrons angeordneten Ionenquelle wird durch die hochfrequente Beschleunigungsspannung stets ein Teil der extrahierten Ionen wieder in Richtung der Ionenquelle zurückbeschleunigt. Ein Teil dieser Ionen gelangt dann durch den Emissionsschlitz zurück in den Entladungsraum. Bringt man gegenüber dem Emissionsschlitz im Entladungsraum eine Sputterelektrode an und legt diese auf definiertes Potential, so zerstäuben die zurückbeschleunigten Ionen das Material der Sputterelektrode. Abb.2 zeigt die Penning-Ionenquelle mit Sputterelektrode des Rossendorfer Zyklotrons. Durch Wasserkühlung der Sputterelektrode wird das Verdampfen des gesamten Sputtermaterials weitestgehend verhindert. Die Sputterrate ist u.a. um so größer, je schwerer die auf die Sputterelektrode auftreffenden Ionen sind. Daher wird die Ionenquelle mit Argon betrieben. Als Material für die Sputterelektrode wurden polykristallines LiF und LiF-Einkristalle verwendet. Die besten Ergebnisse bezüglich Lebensdauer und Stabilität der Ionenquelle sind mit LiF-Einkristallen erreicht worden. Mit polykristallinem angereichertem  ${}^6\text{LiF}$  wurden über 5 Stunden mittlere  ${}^6\text{Li}^{3+}$ -Ionenströme bis zu 15 nA extrahiert. Bei einkristallinem LiF waren der Ionenstrom bis zu einem Faktor 2 geringer und die Lebensdauer der Sputterelektrode dagegen dreimal größer.

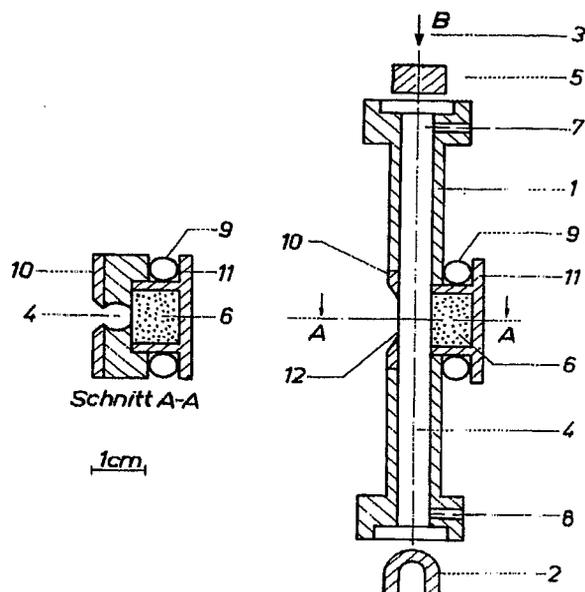


Abb. 2 Penning-Ionenquelle mit Sputterelektrode

1-Anode, 2-Kathode, 3-Induktion des magnetischen Feldes, 4-Entladungsraum, 5-Antikathode, 6-Sputtermaterial (Li-Verbindung), 7,8-Gaszuführung, 9-Wasserkühlung, 10-Emissionsschlitzblech, 11-Sputterelektrode, 12-Emissionsschlitz

Vergleicht man beide Methoden zur Erzeugung von Lithiumionen, so zeigen die Ergebnisse, daß mit der Ionenquelle mit Verdampfer höhere Lithiumionenströme erzielt werden als mit der Sputterionenquelle. Von Nachteil ist, daß die Verdampfung metallischen Lithiums zu einer Kontamination der Anlagenteile in der Beschleunigungskammer des Zyklotrons führt. Insbesondere sind davon die Duanten betroffen, deren Spannungsfestigkeit mit zunehmender Betriebsdauer abnimmt. Zeitaufwendige Säuberung der Anlagenteile ist die Folge. Beim Einsatz der Sputterionenquelle mit einkristallinem LiF wurden dagegen keine derartigen störenden Kontaminationen beobachtet. Der Betrieb der Sputterionenquelle mit Argon führte dagegen zu einem schnelleren Verschleiß der direktgeheizten Kathode im Vergleich zum Betrieb mit Wasserstoff. Durch die Entwicklung einer Penning-Ionenquelle mit indirektgeheizter Kathode vom Dubna-Typ konnte die Lebensdauer der Kathode wesentlich erhöht werden [3]. Folglich wurde die Ionenquelle mit Verdampfer besonders für kurzzeitige Experimente mit höheren  $\text{Li}^{3+}$ -Ionenströmen und die Sputterionenquelle für langzeitigere Experimente mit niedrigeren  $\text{Li}^{3+}$ -Ionenströmen eingesetzt.

An den genannten Arbeiten waren außer dem Verfasser wesentlich die Herren G.Kerber, W.Naumann und H.Odrich beteiligt.

#### Literatur

- [1] J.Dietrich, G.Kerber, H.Odrich, W.Naumann, A multicharged Lithium Penning ion source for the Rossendorf cyclotron U-120, Nucl. Instrum. and Methods A241 (1985) 596
- [2] J.Dietrich, G.Kerber, W.Naumann, H.Odrich, Erzeugung und Beschleunigung von  $\text{Li}^{3+}$ -Ionen am Rossendorfer Zyklotron U-120, Experimentelle Technik der Physik 34 (1986) 3, 191
- [3] H.Odrich, G.Kerber, J.Dietrich, W.Naumann, Penning-Ionenquelle mit indirektgeheizter Kathode am Rossendorfer Zyklotron U-120, Kernenergie 31 (1988) 8, 352