

## MASTER

De produktie van met 15O gemerkt O<sub>2</sub> en CO<sub>2</sub> aan de THE voor toepassing in de nucleaire geneeskunde

Castelijns, C.A.M.

*Award date:*  
1982

[Link to publication](#)

### Disclaimer

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

### General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

DE PRODUKTIE VAN MET  $^{15}\text{O}$  GEMERKT  $\text{O}_2$   
EN  $\text{CO}_2$  AAN DE THE VOOR TOEPASSING  
IN DE NUCLEAIRE GENEESKUNDE

Afstudeerverslag van: C.A.M. Castelijns

Vakgroep : Deeltjesfysica  
Afdeling : Technische Natuurkunde  
Datum : juni 1982  
Afstudeerhoogleraar: prof. dr. ir. H.L. Hagedoorn  
Begeleider : ir. A.G.M. Janssen

TECHNISCHE HOGESCHOOL EINDHOVEN

## Samenvatting

Aan de Technische Hogeschool Eindhoven is, binnen de onderwerpgroep cyclotronoepassingen, onderzoek verricht naar de produktie van  $^{15}\text{O}$  ten behoeve van de nucleaire geneeskunde, onder compact-cyclotron voorwaarden.

De produktie van  $^{15}\text{O}$  in de chemische vormen  $^{15}\text{O}_2$  en  $\text{C}^{15}\text{O}$  geschiedt via de  $^{14}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$  reaktie door bestraling van gasmengsels bestaande uit natuurlijk stikstof met daaraan toegevoegd enkele procenten (1%-10%) zuurstof respectievelijk kooldioxide. Voor de bestraling wordt gebruik gemaakt van een deutronenbundel met een energie van 5 MeV.

De produktieopbrengst, de radionuklidische -, de radiochemische -, en de chemische zuiverheid van het verkregen produkt wordt gecontroleerd met behulp van voor dit onderzoek gebouwde meetapparatuur.

De opbrengst aan  $^{15}\text{O}$  aktiviteit bedraagt 23 MBq/s (625  $\mu\text{A}/\text{s}$ ) bij bestraling van een  $\text{N}_2/\text{O}_2$  gasmengsel bestaande uit 99%  $\text{N}_2$  en 1%  $\text{O}_2$  met 5 MeV deutronen bij een maximale bundelstroom van 10  $\mu\text{A}$ .

Het produkt is radionuklidisch, radiochemisch en chemisch van zodanige samenstelling dat goede perspectieven voor een gebruik in de nucleaire geneeskunde geboden worden.

## INHOUDSOPGAVE

Samenvatting

Voorwoord

### 1 INLEIDING

- 1.1 toepassingen van  $^{15}\text{O}$  in de nucleaire geneeskunde
- 1.2 het radioactieve verval van  $^{15}\text{O}$
- 1.3 randvoorwaarden bij de  $^{15}\text{O}$  produktie voor medische doeleinden
- 1.4 einddoel van het verricht onderzoek

### 2 ENIGE BEGRIPPEN BETREFFENDE HET RADIOAKTIEF VERVAL

- 2.1 halfwaardetijd
- 2.2 Q-waarde, drempelenergie en Coulomb-barrière
- 2.3 opbrengst berekeningen

### 3 MOGELIJKHEDEN VOOR DE PRODUKTIE VAN $^{15}\text{O}$

- 3.1 reaktiekeuze
- 3.2 de  $^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$  reaktie
- 3.3 produktie van  $^{15}\text{O}$  en  $\text{C}^{15}\text{O}$  uitgaande van de  $^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$  reaktie: te verwachten verontreinigingen

### 4 EXPERIMENTELE PRODUKTIE - EN MEETOPSTELLING

- 4.1 kort schematisch overzicht van de experimentele opstelling
- 4.2 het AVF cyclotron en bundelgeleidingssysteem
- 4.3 het gastarget
- 4.4 transportleidingen voor het targetgas
- 4.5 meetopstelling voor de bepaling van produktieopbrengst, radionuklidische zuiverheid en radiochemische zuiverheid
- 4.6 ijking van de coïncidente meetopstelling t.b.v. opbrengst bepalingen
- 4.7 bepaling van produktieopbrengst en radionuklidische zuiverheid
- 4.8 bepaling van de radiochemische zuiverheid

5 MEETRESULTATEN

- 5.1 radionuklidische zuiverheid
- 5.2 produktieopbrengst metingen bij de  $^{15}\text{O}$   
en  $\text{C}^{15}\text{O}$  produktie
- 5.3 radiochemische zuiverheid
- 5.4 chemische zuiverheid

CONCLUSIES

- APPENDIX I coïncidente meettechniek
- APPENDIX II positronemissie tomografie
- APPENDIX III colorimetrische bepaling  $\text{NO}_2$  in gassen met behulp  
van de Saltzman-test

REFERENTIES

Nawoord

## VOORWOORD

Dit afstudeerverslag beschrijft de produktie van  $^{15}\text{O}$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 123 \text{ s}$ ) in de chemische vormen  $^{15}\text{O}_2$  en  $\text{C}^{15}\text{O}_2$  aan de Technische Hogeschool Eindhoven. De continue produktie- en on-line meetopstelling die voor deze produktie nodig is, is tijdens het in dit verslag beschreven afstudeerwerk ontwikkeld en gebouwd. Omwille van de leesbaarheid van het verslag is deze bouw en ontwikkeling van de opstellingen niet in chronologische volgorde weergegeven. De produktie- en meetopstellingen zijn beschreven in de vorm die zij na een aantal wijzigingen op grond van experimenteel gebleken tekortkomingen hebben verkregen.

In dit verslag wordt zoveel mogelijk gebruik gemaakt van de eenheden uit het SI stelsel. Omdat in de voor dit onderzoek relevante vakgebieden, nog veelvuldig gebruik gemaakt wordt van eenheden die niet tot het SI stelsel behoren, is in gevallen waarbij hierdoor onduidelijkheid zou kunnen ontstaan, alsmede bij vergelijkingen met de literatuur, zowel de oude alsook de nieuwe (SI) eenheid vermeld.

Ook worden ingeburgerde benamingen, zoals "liter" voor inhoudsmaat en "eV" voor de energie van ioniserende straling en van versnelde geladen deeltjes gebruikt.

*Binnen de onderwerpgroep cyclotrontoepassingen aan de Technische Hogeschool Eindhoven, is onderzoek verricht aan de produktie van het kortlevende radionuklide  $^{15}\text{O}$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 123 \text{ s}$ ), voor toepassing in de nucleaire geneeskunde.*

*In dit inleidende hoofdstuk wordt beschreven waarom voor dit onderzoek is gekozen, en tot welke aspecten van het produktieproces het onderzoek zich heeft beperkt.*

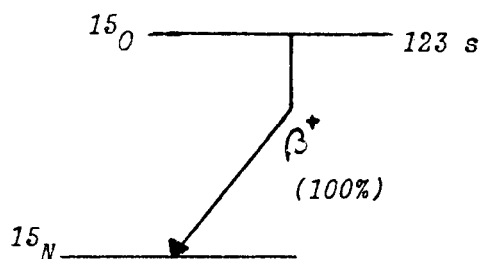
### 1.1 toepassingen van $^{15}\text{O}$ in de nucleaire geneeskunde

Het radionuklide  $^{15}\text{O}$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 123 \text{ s}$ ) is voor verschillende toepassingen in de nucleaire geneeskunde geschikt. Het is onder andere bruikbaar voor het onderzoek van long-embolie (NIC79), hartonderzoek (KEN75) en het opsporen van een shunt tussen linker en rechter hartkamer (SUZ77). Een unieke toepassing van  $^{15}\text{O}$  in de nucleaire geneeskunde, in combinatie met positronemissie tomografie, ligt op het gebied van het fysiologisch hersenonderzoek. Bij het gebruik van  $^{15}\text{O}$  als radioactieve tracer gebonden aan  $\text{CO}_2$  is het mogelijk de regionale bloedstroom in absolute zin te bepalen. In combinatie met aan  $\text{O}_2$  gelabeld  $^{15}\text{O}$  kan ook de regionale zuurstofextractie fractie en de zuurstof consumptie in weefsel, worden bepaald (FRA80)(LAM81).

De werking van positronemissie tomografie (PET) en het principe waarop deze meetmethode berust wordt nader besproken in appendix 2 .

### 1.2 het radioactieve verval van $^{15}\text{O}$

Zuurstof-15 is een radionuklide met een halfwaardetijd van 2,07 minuten. Het vervalt rechtstreeks naar de grondtoestand van het stabiele  $^{15}\text{N}$ , onder uitzending van een positron. In figuur 1.2-1 staat het verval-schema van  $^{15}\text{O}$  weergegeven.



figuur 1.2-1  $^{15}\text{O}$  vervalschema

Het bij het radionuklidisch verval van  $^{15}\text{O}$  uitgezonden positron heeft een maximale energie van 1,738 MeV. Het maximum van de continue energieverdeling van de uitgezonden positronen ligt bij een energie van 0,69 MeV. De dracht van een elektron met een beginenergie van 1,74 MeV bedraagt in water 0,82 cm.

Op het einde van zijn baan zal een bij desintegratie van een  $^{15}\text{O}$  kern uitgezonden positron een reactie aangaan met een negatief elektron uit de omgeving, waarbij de massas van beide deeltjes in stalingsenergie worden omgezet. Bij dit zogenaamde annihilatieproces wordt de vrijkomende energie in 99% van alle gevallen uitgezonden in de vorm van twee gamma-quanta van 511 keV elk. Vanwege het behoud van impulsmoment maken de twee quanta een hoek van  $180^\circ$  met elkaar. Bij ongeveer 1% van de annihilatieprocessen komt de energie vrij in de vorm van 3 quanta van 337,9 keV, iederuitgezonden onder een hoek van  $120^\circ$  t.o.v. elkaar, binnen een plat vlak.

### 1.3 randvoorwaarden bij de $^{15}\text{O}$ produktie voor medische doeleinden

#### - keuze van de versneller

Zuurstof-15 is een nuklide met een neutronetekort in de kern. Dit houdt in dat  $^{15}\text{O}$  kan worden verkregen uit het bestralen van geschikte targetkernen met versnelde geladendeeltjes, geleverd door een cyclotron. Vanwege de korte halfwaardetijd van  $^{15}\text{O}$  (2,07 min) kan er geen groot tijdsverschil toegelaten worden tussen het tijdstip van produktie en het tijdstip van toepassing. Transport van  $^{15}\text{O}$  over lange afstanden is dus uitgesloten. Daarom zullen de plaats van produktie en de plaats



van toepassing binnen korte afstand van elkaar moeten liggen.

Hieraan kan worden voldaan door de medische centra waar toepassing van  $^{15}\text{O}$  gewenst is, uit te rusten met een deeltjesversneller.

De aanschafkosten van een cyclotron zijn ongeveer evenredig met de tweede macht van de maximale deeltjesenergie welke door het cyclotron kan worden geleverd. De bedrijfskosten hangen nauw samen met de omvang van de technische staf die nodig is voor de bediening en onderhoud van de versneller, en de benodigde randapparatuur.

Het uitrusten van een medisch centrum met een versneller zal financieel eerder haalbaar zijn wanneer een zogenaamd tafel-cyclotron (compact-cyclotron) wordt aangeschaft. Een tafel-cyclotron is eenvoudig te bedienen, er is geen overmatige randapparatuur noodzakelijk, en de aanschafprijs is relatief laag (ca. \$ 300.000 ) (SER75)

Een compact-cyclotron heeft een maximale proton energie die bij de meeste uitvoeringen zal liggen rond de 10 MeV. De daarmee overeenkomstige energieën van andere deeltjes staan vermeld in tabel 1.3-1

deeltje	maximale energie
proton	10 MeV
deuteron	5 MeV
He-3 kern	13,3 MeV
He-4 kern	10 MeV

*tabel 1.3-1 maximale deeltjesenergieën haalbaar met een compact-cyclotron met een maximale proton energie van 10 MeV*

- continu of ladingsgewijs produktiesysteem

De meeste radionukliden voor medische toepassing worden ladingsgewijs geproduceerd en vervolgens opgewerkt tot radiofarmaca. Vanwege de korte halfwaardetijd van  $^{15}\text{O}$  zal bij gebruik van dit radionuklide tijdens langdurige onderzoeken een continue aanvoer van het nuklide aanwezig moeten zijn. Het is daarom aantrekkelijk een produktie systeem te gebruiken waarbij tijdens de bestraling het geproduceerde  $^{15}\text{O}$  continu wordt afgevoerd uit het target. Ook het brengen in de juiste chemische vorm, evenals de zuivering van het verkregen produkt, dient bij voorkeur als continuproces te worden uitgevoerd.

Het eenvoudigste medium waarmee een continu proces kan worden bewerkstelligd is gas. Gas is eenvoudig te transporteren en veroorzaakt slechts een geringe drukval in transportleidingen en eventuele absorbers, waardoor het gebruik van extra pompen vaak niet noodzakelijk is. Bovendien zijn gastargets in het algemeen eenvoudiger te koelen dan vaste stof targets, in verband met een groter koelend oppervlak.

De samenstelling van het targetgas moet zodanig worden gekozen dat een maximale hoeveelheid aan activiteit het target en absorbersysteem zal verlaten in de gewenste chemische vorm. De kostprijs van het targetgas moet zo laag mogelijk worden gehouden, zeker bij het gebruik van een continu open produktie systeem.

#### 1.4 einddoel van het verricht onderzoek

Het einddoel van het in dit verslag beschreven onderzoek is:

- 1) De bouw van een experimentele opstelling waarmee, onder tafelcyclotron voorwaarden,  $^{15}\text{O}$  continu kan worden geproduceerd in de vormen  $^{15}\text{O}_2$  en  $^{15}\text{C}^{18}\text{O}_2$ . De produktieopbrengst moet voldoende hoog zijn voor gebruik in de nucleaire geneeskunde.
- 2) De bouw van een on-line analysesysteem voor een controle van de radionuklidische-, radiochemische- en chemische zuiverheid van het onder 1 genoemde verkregen produkt.

## HOOFDSTUK 2 ENIGE BEGRIPPEN BETREFFENDE HET RADIOAKTIEF VERVAL

*In dit hoofdstuk komen een aantal kernfysische grootheden ter spake, en wordt de methode van opbrengstberekening bij bestraling van targets met versnelde geladen deeltjes behandeld*

2.1 halfwaardetijd

De snelheid waarmee een radionuklide vervalst, wordt aangegeven met de vervalkonstante  $\lambda$  ( $s^{-1}$ ). De activiteit van een radioactief preparaat dat op tijdstip  $t$ ,  $N(t)$  radioactieve kernen bezit wordt gegeven door:

$$A(t) = \lambda N(t) \quad (s^{-1}) \quad 2.1-1$$

In het tijdsinterval  $dt$  verandert het aantal radioactieve kernen met:

$$dN(t) = -\lambda N(t) dt \quad 2.1-1$$

Uit deze twee vergelijkingen volgt:

$$\begin{aligned} N(t) &= N(0) \exp(-\lambda t) \\ A(t) &= A(0) \exp(-\lambda t) \quad (s^{-1}) \end{aligned} \quad 2.1-3$$

De halveringstijd van een radionuklide is de tijdsduur waarin de helft van de in een preparaat aanwezige radioactieve kernen is vervallen. Voor deze halfwaardetijd is met formule 2.1-3 af te leiden;

$$T_{\frac{1}{2}} = \ln(2)/\lambda \quad (s) \quad 2.1-4$$

2.2 Q-waarde, drempelenergie en Coulomb-barrière

De algemene reactievergelijking van een kernreactie waarbij nuklide B gevormd wordt door beschieting van nuklide A met een deeltje  $a$ , en waarbij het reactieproduct  $b$  vrijkomt wordt gegeven door



In vereenvoudigde schrijfwijze wordt dit weergegeven door;



Bij een kernreactie kan energie vrijkomen of moeten worden toegevoerd. De hoeveelheid energie die bij de reactie vrijkomt, vermindert met de kinetische energie van het invallende deeltje a, wordt de Q-waarde van de kernreactie genoemd. Deze Q-waarde kan worden berekend m.b.v. de massas van de bij de kernreactie betrokken kernen en deeltjes en de relatie  $E = mc^2$ .

Als eenheid van massa wordt veelal de atomaire massa eenheid (a.m.e.) genomen. De a.m.e. is gelijk aan 1/12 deel van de massa van een  $^{12}_6\text{C}$  atoom, en komt overeen met een energie van 931,5 MeV.

Voor de Q-waarde van de reactie A(a,b)B geldt dan

$$Q = (m(A) + m(a) - m(B) - m(b)) \cdot 931,5 \quad \text{MeV} \quad 2.2-3$$

met  $m(x) =$  de massa van x in a.m.e.

Wanneer de Q-waarde negatief is, moet er energie worden toegevoerd opdat de reactie zal verlopen. In dit geval is er sprake van een drempelenergie. Dit is de minimale energie welke deeltje a moet bezitten opdat de reactie kan verlopen. Bij benadering wordt de drempelenergie gegeven door

$$E_{dr} = - \frac{I(A) + I(a)}{I(A)} \cdot Q \quad \text{MeV} \quad 2.2-4$$

met  $I(x) =$  massa getal deeltje x

$Q =$  Q-waarde van de reactie

Bij een reactie met een positieve Q-waarde komt energie vrij. In deze gevallen wordt de drempelenergie gelijk gesteld aan 0 MeV. Voor het verlopen van de reactie A(a,b)B is dan noodzakelijk dat deeltje a een zo grote energie heeft dat het de Coulomb-barrière van kern A kan doorbreken.

Voor deze energie geldt bij benadering (LAN73)

$$E_c = \left(1 + \frac{I(a)}{I(A)}\right) \frac{1,02 \frac{Z(a)}{I(A)^{1/2}} \frac{Z(A)}{I(a)^{1/2}}}{I(A)^{1/2} + I(a)^{1/2}} \text{ MeV}$$

met  $I(x) =$  massa getal deeltje  $x$   
 $Z(x) =$  atoomnummer deeltje  $x$

Het is echter mogelijk dat de reactie  $A(a,b)B$  reeds verloopt wanneer deeltje  $a$  een kleinere energie heeft dan  $E_c$ , door het zogenaamde tunnелеffekt.

### 2.3 opbrengst berekeningen

De produktieopbrengst bij het aanmaken van een radionuklide is afhankelijk van een aantal parameters. Een van de belangrijkste is de nukleaire werkzame doorsnede van de reactie. De werkzame doorsnede is een maat voor de waarschijnlijkheid dat een bepaalde reactie zal optreden. Een gebruikelijke eenheid voor de werkzame doorsnede is de barn. ( $10^{-28} \text{ m}^2$ ) De produktie en het verval van een radionuklide, bij bestraling van een dunne targetlaag  $dx$ , wordt gegeven door:

$$\frac{dN(x)}{dt} = \phi n s(x) \Delta x - \lambda N(x) \quad (\text{s}^{-1}) \quad 2.3-1$$

met  $N$  : aantal radioactieve kernen  
 $\phi$  : deeltjesflux ( $\text{m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ )  
 $n$  : aantal targetkernen per gewichtseenheid ( $\text{kg}^{-1}$ )  
 $s$  : nukleaire werkzame doorsnede ( $\text{m}^2$ )  
 $\Delta x$  : bestraald target oppervlak ( $\text{m}^2$ )  
 $x$  : indringdiepte in het target ( $\text{kg m}^{-2}$ )  
 $\lambda$  : vervalconstante ( $\text{s}^{-1}$ )  
 $t$  : tijd (s)

Bij een konstante deeltjesflux is het aantal radioactieve kernen dat gedurende de tijd  $t$  in een laagje  $dx$  op diepte  $x$  in het target gevormd wordt gelijk aan:

$$N(x) = \phi n s(x) \Delta x \left( \frac{1 - \exp(-\lambda t)}{\lambda} \right) \quad 2.3-2$$

De in het laagje  $dx$  gevormde activiteit is dan gelijk aan:

$$A(x) = \phi n s(x) \Delta x (1 - \exp(-\lambda t)) \quad (s^{-1}) \quad 2.3-3$$

In het gehele target is dan een activiteit aanwezig gelijk aan:

$$A = (1 - \exp(-\lambda t)) n \phi \Delta x \int_{E_0}^{E_t} s(E) \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE \quad (s^{-1}) \quad 2.3-4$$

met de nieuw ingevoerde symbolen

$$\begin{aligned} E_t &= \text{energie van het op het target va-lende deeltje (MeV)} \\ E_0 &= \text{energie van het uit het target tredende deeltje (MeV)} \\ \left( \frac{dE}{dx} \right) &= \text{stoppende kracht} \quad (\text{MeV m}^2 \text{ kg}^{-1}) \end{aligned}$$

Gedurende de tijd  $t$  vallen er op het target  $\phi \Delta x t$  deeltjes. De hoeveelheid lading die dan op het target is gevallen is gelijk aan

$$Z \phi \Delta x t \cdot 1,6 \cdot 10^{-19} \quad (C) \quad 2.3-5$$

met  $Z$  = ladingsgetal opvallende deeltje

In het geval dat de bestralingstijd  $t_b$  veel kleiner is dan de halfwaardetijd  $T_{1/2}$  van het geproduceerde radionuklide, geldt dat

$$\lambda t_b \ll 1$$

en gaat formule 2,3-4 over in

$$A = \phi n \Delta x \lambda t \int_{E_0}^{E_t} s(E) \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE \quad 2.3-6$$

Voor de produktieopbrengst bij bestraling met deeltjes met een energie van E (MeV) geldt dan:

$$Y(E) = \frac{6,023 \cdot 10^{23} \cdot 10^{19}}{Z \cdot 1,6} \frac{s(E)}{\left(\frac{dE}{dx}\right) M} \quad \text{Bq/C MeV} \quad 2.3-7$$

met  $M$  = moleculaire massa ( $\text{kg mol}^{-1}$ ) van het target materiaal

Voor de totale opbrengst geldt dan

$$Y = \int_{E_0}^{E_t} Y(E) dE \quad \text{Bq/C} \quad 2.3-8$$

Indien de bestralingstijd  $t_b$  veel groter is dan de halfwaardetijd  $T_{1/2}$  van het geproduceerde nuklide, geldt

$$\lambda t_b \gg 1$$

In dit geval gaat formule 2.3-4 over in

$$A = n \cdot \sigma \cdot \int_{E_0}^{E_t} s(E) \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \quad (\text{s}^{-1}) \quad 2.3-9$$

Formule 2.3-7 gaat dan over in

$$Y(E) = \frac{6,023 \cdot 10^{23} \cdot 10^{19}}{Z \cdot 1,6} \frac{s(E)}{\left(\frac{dE}{dx}\right) M} \quad \text{Bq s / C MeV} \quad 2.3-10$$

In dit geval worden er per tijdseenheid evenveel kernen geproduceerd, als er verdwijnen door fysisch verval. De op dat moment geproduceerde activiteit wordt de verzadigings activiteit genoemd.

In dit hoofdstuk worden de mogelijkheden voor de produktie van  $^{15}\text{O}$  nagegaan. Aan de hand van de voorwaarden die in hoofdstuk 1 zijn besproken, wordt een keuze gemaakt uit verschillende reacties. De uiteindelijke reactie wordt nader bekeken.

Ook wordt aangegeven welke radionuklidische, radiochemische en chemische verontreinigingen in het bestraalde gas te verwachten zijn.

### 3.1 reäktiekeuze

Voor de produktie van  $^{15}\text{O}$  met behulp van een cyclotron, komen een aantal reacties in aanmerking. Deze reacties staan vermeld in tabel 3.1-1. Tevens staan in deze tabel een aantal belangrijke parameters voor de reacties genoemd te weten de Q-waarde van de reactie ( $E_q$ ), de drempelenergie van de reactie ( $E_d$ ), de waarde van de potentiaalbarriere ( $E_c$ ), en het natuurlijk isotopisch voorkomen van de targetkernen (N).

reaktie	$E_q$ (MeV)	$E_d$ (MeV)	$E_c$ (MeV)	N(%)
$^{14}\text{N}(d,n)$	+ 5,07	0	2,2	99,63
$^{15}\text{N}(p,n)$	- 3,54	3,8	2,2	0,37
$^{12}\text{C}(\alpha,n)$	- 8,51	11,4	4,6	98,89
$^{13}\text{C}(^3\text{He},n)$	+ 7,13	0	7,9	1,11
$^{16}\text{O}(p,pn)$	-15,67	16,7	2,5	99,75

tabel 3.1-1 kernreacties voor de produktie van  $^{15}\text{O}$  met enige belangrijke parameters



Voor de produktie van  $^{15}\text{O}$  moet uit deze reacties een keuze worden gemaakt. Hiertoe zijn de volgende punten van belang (zie hoofdstuk 1):

- 1) de reactie moet mogelijk zijn met een compact cyclotron.  
de reactie moet dus een lage drempelenergie hebben.
- 2) uit kosten overweging is het wenselijk te werken met targetmateriaal van natuurlijk isotopische samenstelling, zeker bij het gebruik van een continu open circuit systeem
- 3) omdat de produktie van  $^{15}\text{O}$  een continu proces zal zijn, is het werken met gastargets te preferreren boven het gebruik van meer gecompliceerde vaste stof targets.
- 4) de opbrengst moet hoog genoeg zijn om toepassing in de nucleaire geneeskunde mogelijk te maken.
- 5) het brengen van  $^{15}\text{O}$  in de gewenste chemische vorm en het verwijderen van verontreinigingen van radionuklidische, radiochemische of chemische aard, moet als continu proces uitgevoerd kunnen worden.

Op grond van punt 1 vallen de reacties  $^{12}\text{C}(\alpha, n)^{15}\text{O}$  en  $^{16}\text{O}(p, pn)^{15}\text{O}$  af. De reacties op  $^{15}\text{N}$  en  $^{13}\text{C}$  zijn niet geschikt in verband met hun lage natuurlijke voorkomen, wat het gebruik van verrijkt targetmateriaal nodig maakt (punt 2). Tevens zijn de reacties op  $^{12}\text{C}$  en  $^{13}\text{C}$  moeilijk te verenigen met punt 3, tenzij men gaat werken met koolwaterstoffen of koolstofoxiden, hetgeen de verwezenlijking van punt 5 zal bemoeilijken. De reactie  $^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$  is de reactie die het meest aan de genoemde voorwaarden tegemoet komt. Onze uiteindelijke keuze is dan ook op deze reactie gevallen. Uit de literatuur (CLA75) is bekend dat de opbrengst van deze reactie waarschijnlijk groot genoeg is voor toepassing in een continu produktiesysteem, waarbij een mengsel ongeveer gelijk in samenstelling aan die van lucht bestraald wordt. Het voldoen van de  $^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$  reactie aan de voorwaarden 4 en 5 is onder andere onderwerp van dit onderzoek.

3.2 de  $^{14}\text{N}(d,n)^{15}\text{O}$  reactie

De reactie  $^{14}\text{N}(d,n)^{15}\text{O}$  heeft een Q-waarde van 5,07 MeV, en derhalve een drempelenergie gelijk aan 0 MeV. de coulomb barriere van deze reactie bedraagt 2,22 MeV.

Over de werkzame doorsnede van deze reactie bestaat in de literatuur weinig overeenstemming (FIO79) (RET60) (VER77). Een met de formules 2.3-7 en 2.3-8 en 2.3-10 berekende opbrengst van de  $^{14}\text{N}(d,n)^{15}\text{O}$  reactie, voor de verschillende in de literatuur gevonden waarden van de werkzame doorsnede, staat gegeven in tabel 3.2-1. Bij de berekeningen is uitgegaan van een beginenergie van de deutronen van 5 MeV, en een "oneindig" dik target. De voor deze berekeningen gebruikte waarden van de stoppende kracht zijn gegeven door Williamsom e.a. (WIL66)

In tabel 3.2-1 is de volgende kolomaanduiding gebruikt;

bron: de literatuur referentie van de gebruikte waarde van de werkzame doorsnede

$Y_c$  : het zuivere produktietempo aan  $^{15}\text{O}$  activiteit in kBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{s}$ , berekend met behulp van de formule 2.3-7 en 2.3-8

$Y_v$  : de verzadigingsactiviteit aan  $^{15}\text{O}$  in kBq/ $\mu\text{A}$ , berekend met behulp van de formules 2.3-8 en 2.3-10

bron	$Y_c$ (kBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{s}$ )	$Y_v$ (kBq/ $\mu\text{A}$ )
FIO79	8954	1572
VER77	900	1036
RET60	740	129

tabel 3.2-1 zuivere produktietempo en verzadigings-activiteit voor de  $^{14}\text{N}(d,n)^{15}\text{O}$  reactie

### 3.3 produktie van $^{15}\text{O}$ en $^{15}\text{C}$ uitgaande van de $^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$ reactie; te verwachten verontreinigingen

In 3.1 is gekozen voor de bestraling van stikstofgas met de natuurlijke isotopische samenstelling met 5 MeV deutronen.

Er is te verwachten dat bij de bestraling van zuiver  $\text{N}_2$  gas,  $^{15}\text{O}$  zich chemisch zal binden aan stikstof tot bijvoorbeeld  $\text{N}^{15}\text{O}$  en  $\text{N}_2^{15}\text{O}$ . Om het geproduceerde  $^{15}\text{O}$  in de gewenste chemische vorm te brengen wordt veelal gebruik gemaakt van toevoeging van een stabiele drager. Clark e.a. (CLA75) voegen enkele procenten  $\text{O}_2$  respectievelijk  $\text{CO}_2$  toe aan het targetgas om door middel van terugstootmerking (recoil labeling)  $^{15}\text{O}$  resp.  $^{15}\text{C}$  te verkrijgen.

We zullen nu de gevolgen bespreken van het toevoegen van deze dragers voor wat betreft de radionuclidische, chemische, en radiochemische zuiverheid van het verkregen produkt.

#### - radionuclidische zuiverheid

Bij het bestalen van  $\text{N}_2/\text{O}_2$  en  $\text{N}_2/\text{CO}_2$  gasmengsels met deutronen kunnen ook andere radionucliden dan het gewenste  $^{15}\text{O}$  worden aangemaakt. In tabel 3.3-1 staan de meest waarschijnlijke reacties gegeven die mogelijk tot deze radionuclidische verontreinigingen kunnen leiden, tesamen met hun reactieprodukten, de halveringstijden van deze reactieprodukten ( $T_{1/2}$ ) en de drempelenergie van de reactie.

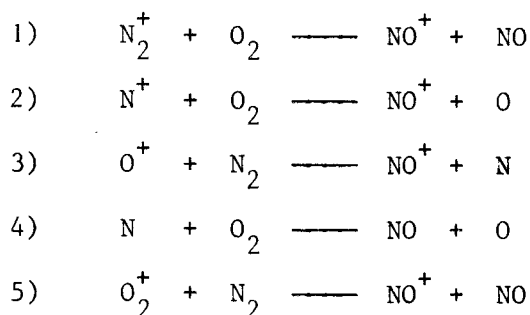
Uit tabel 3.3-1 volgt dat bij bestraling van het targetgas met 5 MeV deutronen als verontreinigingen slechts  $^{16}\text{N}$ ,  $^{17}\text{F}$  en  $^{18}\text{F}$  verwacht mogen worden bij gebruik van  $\text{N}_2/\text{O}_2$  mengsels, en  $^{16}\text{N}$ ,  $^{17}\text{F}$ ,  $^{18}\text{F}$  en  $^{13}\text{N}$  bij het gebruik van  $\text{N}_2/\text{CO}_2$  mengsels. Hierbij moet worden opgemerkt dat al deze verontreinigingen alleen kunnen ontstaan uit reacties met targetkernen die slechts voor maximaal enkele molair procenten in het targetgas voorkomen.

gasmengsel	reactie	$T_{\frac{1}{2}}$	$E_d$ (MeV)
$N_2/O_2$	$^{14}N(d, dn) ^{14}O$	71 s	9,3
	$^{15}N(d, p) ^{16}N$	7,1 s	0
	$^{16}O(d, n) ^{17}F$	66 s	1,8
	$^{16}O(d, 2n) ^{16}F$	$10^{-19}$ s	20,9
	$^{18}O(d, 2n) ^{18}F$	110 m	5,2
	$^{17}F(d, n) ^{18}F$	110 m	0
$N_2/CO_2$	$^{12}C(d, n) ^{13}N$	10 m	0,3
	$^{12}C(d, 2n) ^{12}N$	0,01 s	23,8
	$^{13}C(d, 2n) ^{13}N$	10 m	6,0
	als bij $N_2/O_2$ gasmengsels		

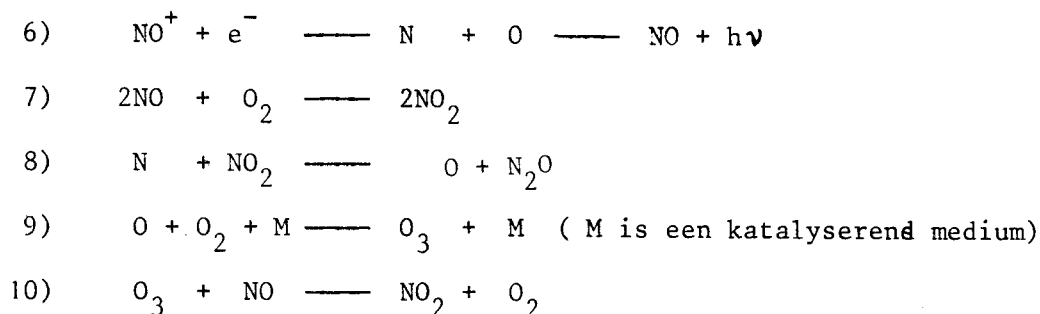
tabel 3.3-1 mogelijke radionuklidische verontreinigingen die kunnen ontstaan bij de produktie van  $^{15}O$  d.m.v. deuteronenbetraling van  $N_2/O_2$  en  $N_2/CO_2$  gasmengsels

- chemische zuiverheid

Bij het bestralen van  $N_2/O_2$  gasmengsels ontstaan onder invloed van het hoge dosistempo allerlei niet radioactieve stikstofoxiden (DMI60)(HAR55) en ozon. Onderzoek van Dmitriev e.a. (DMI66) aan gasontladingen in  $N_2/O_2$  gasmengsels, leidde tot de conclusie dat als primaire ionisatieprodukten  $N_2^+$ ,  $O_2^+$ ,  $N^+$  en  $O^+$  ontstaan. Als secundaire reacties die zouden leiden tot de oxidatie van stikstof postuleert Dmitriev de volgende reacties:



Denaro e.a. (DEN79) postuleren de volgende processen welke zouden volgen op de door Dmitriev e.a. gegeven secundaire reacties;



Bij de produktie van  $^{15}OO$  door bestraling van  $N_2/O_2$  gasmengsels met deuteronen zal in verband met de chemische zuiverheid de concentratie aan stikstofoxiden in het produktiegas dus goed moeten worden beheerst.

De vorming van inactieve stikstofoxiden bij het gebruik van  $N_2/CO_2$  gasmengsels is niet of nauwelijks te verwachten omdat volgens Denaro e.a. (DEN79)  $CO_2$  ongevoelig is voor ioniserende straling, en er in het targetgas geen vrij zuurstof aanwezig is.

Indien het gas spore verontreinigingen van organische stoffen bevat, is de vorming van andere verontreinigingen zoals HCN, CO en  $CO_2$  te verwachten.

- radiochemische zuiverheid

De hierboven beschreven reacties kunnen in principe ook leiden tot de vorming van met  $^{15}\text{O}$  gemerkte stikstofoxiden en ozon, bij de bestraling van  $\text{N}_2/\text{O}_2$  en  $\text{N}_2/\text{CO}_2$  mengsels. In het laatste geval is ook de vorming van  $\text{C}^{15}\text{O}$  te verwachten. Het lijkt echter aannemelijk dat de vorming van deze radiochemische verontreinigingen is te onderdrukken door een juist gekozen drager concentratie ( $^{16}\text{O}_2$  of  $\text{C}^{16}\text{O}_2$ )

*De totale experimentele opstelling bestaat uit een viertal hoofdonderdelen;*

- 1) het AVF cyclotron en bundelgeleidingssysteem*
- 2) het gastarget*
- 3) de transportleiding voor het targetgas*
- 4) de meetopstellingen voor het bepalen van  
produktieopbrengst, radionuklidische, radio-  
chemische en chemische zuiverheid*

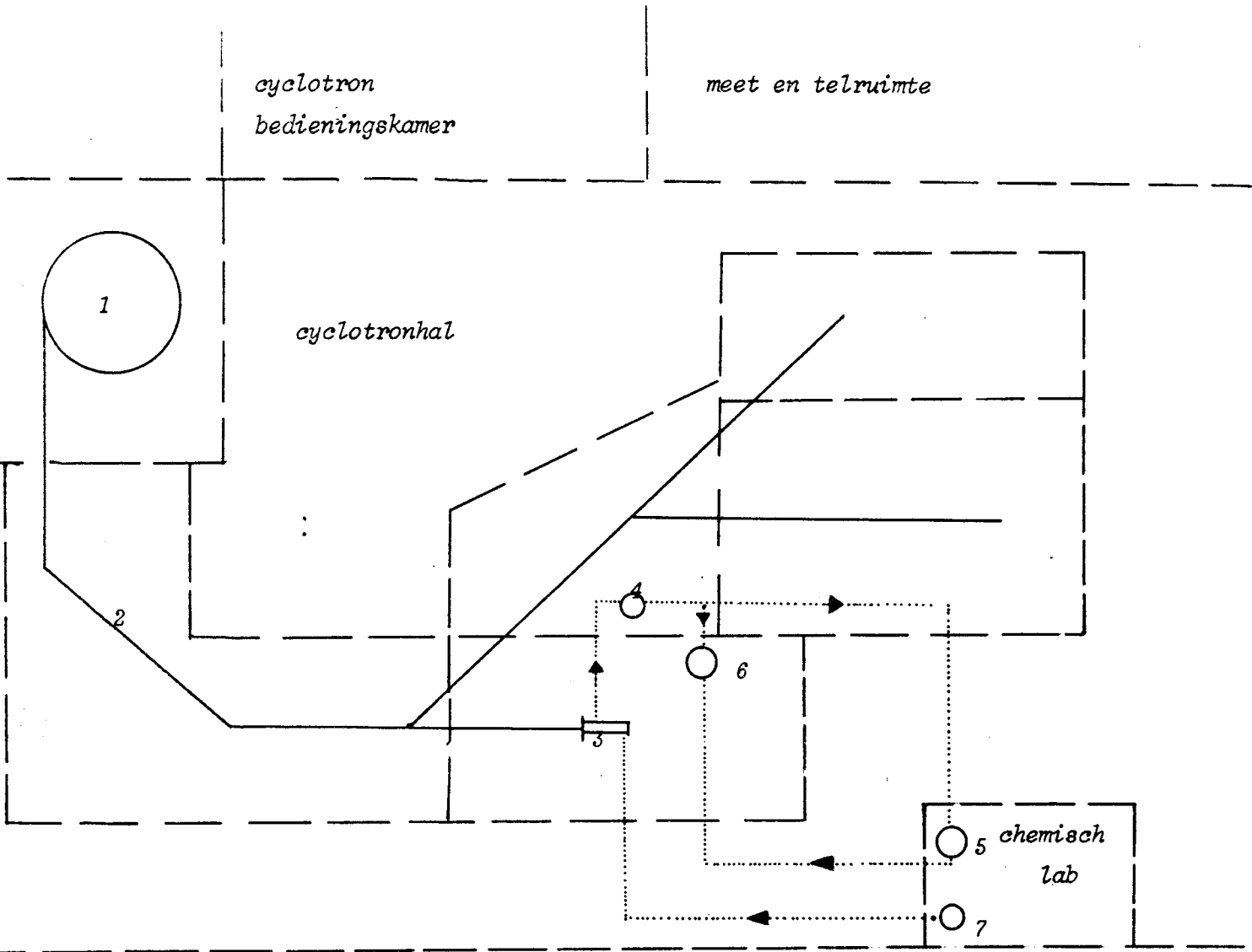
*Nadat in 4.1 een algemeen overzicht van de opstelling is gegeven, worden in de overige paragrafen van dit hoofdstuk de verschillende onderdelen van de opstelling besproken voor wat betreft hun bouw en werking. De met de opstelling verkregen resultaten worden gegeven en besproken in hoofdstuk 5.*

#### 4.1 kort schematisch overzicht van de experimentele opstelling

Het grootste gedeelte van de opstelling bevindt zich in de cyclotronhal van de Technische Hogeschool Eindhoven. Deze hal is opgedeeld in een aantal ruimtes (de bunkers) waarin verschillende opstellingen aanwezig zijn. (zie figuur 4.1-1).

Het AVF cyclotron (4.2) bevindt zich in bunker 1, en wordt bediend vanuit de cyclotronbedieningskamer. Het gastarget (4.3) waarin de daadwerkelijke produktie van  $^{15}\text{O}$  plaatsvindt, bevindt zich in bunker 4A.

Het grootste gedeelte van de meetopstelling (4.5) is geplaatst in een chemisch lab in de cyclotronhal. De meetopstelling is geschikt voor de bepaling van de produktieopbrengst, radionuklidische-, radiochemische-, en chemische zuiverheid van het bestraalde gas. Een groot gedeelte van de meetgegevens wordt verwerkt met een minicomputer die is geplaatst in de meet en telruimte naast de cyclotronbedieningskamer. Een systeem van transportleidingen (4.4) zorgt voor het transport van inactief en bestraald targetgas tussen de verschillende onderdelen van de opstelling. De mogelijkheid voor het plaatsen van absorbers en ovens in de transportleiding is aanwezig.



- |                            |                      |
|----------------------------|----------------------|
| 1) AVF cyclotron           | 5) meetopstelling    |
| 2) bundelgeleidingssysteem | 6) afsterfvat        |
| 3) gastarget               | 7) hoge druk gasfles |
| 4) absorbers               |                      |

————— : bundelpijp  
 - - - - - : ruimteafscheiding  
 ..... : gas-transportleiding

figuur 4.1-1 schematische voorstelling van de plaatsing van de experimentele opstelling



## 4.2

het AVF cyclotron en bundelgeleidingssysteem

Het op de THE aanwezige cyclotron is van het AVF type. De afkorting AVF staat voor azimuthally varying field. Bij dit type cyclotron staat een constante frequentie over de versnelspleet, en wordt de omloopfrequentie van de versnelde deeltjes constant gehouden door de speciale vorm van het magneetveld.

Met het Eindhovense cyclotron kunnen protonen, deuteronen,  $^3\text{He}$ - en  $^4\text{He}$ -kernen worden versneld. De voor deze deeltjes maximale energiën en haalbare bundelstromen staan gegeven in tabel 4.2-1.

deeltje	$E_{\text{max}}$ (MeV)	$I_{\text{max}}$ ( $\mu\text{A}$ )
p	28	100
d	15	100
$^3\text{He}^{++}$	40	50
$^4\text{He}^{++}$	30	50

tabel 4.2-1 maximale energie ( $E_{\text{max}}$ ) en bundelstroom ( $I_{\text{max}}$ ) voor door het Eindhovense AVF cyclotron versnelde deeltjes

Nadat de gewenste deeltjes door het cyclotron op de juiste energie zijn gebracht, worden zij door de extractor naar buiten gebogen, en via het bundelgeleidingssysteem (BGS) naar de gewenste plaats geleid. Het BGS bestaat uit een onder vacuum staande aluminium pijpleiding, en een aantal magnetische lenzen en afbuigmagneten waarmee het mogelijk is de bundel over grote afstand te transporteren.

#### 4.3 het gastarget

Aan het gastarget voor de produktie van  $^{15}\text{O}$  zijn een aantal eisen gesteld, te weten;

- 1) een deutronenbundel met een energie van 5 MeV moet volledig in het target worden gestopt
- 2) de verblijftijd van het targetgas in het gastarget mag niet te groot zijn om verlies van aktiviteit door verval te minimaliseren
- 3) het target moet eenvoudig te koppelen zijn aan het bestaande bundelgeleidingssysteem
- 4) de temperatuur van het target moet tijdens de bestraling beneden circa  $100^\circ\text{C}$  blijven, om beschadigingen aan target en BGS te voorkomen
- 5) tijdens de bestraling moeten de stroom op het target en de temperatuur van het target continu te meten zijn
- 6) aktivering van de targetgashouder met langlevende bestralingsprodukten is ongewenst.

#### - afmetingen van het gastarget

Deutronen met een energie van 5 MeV hebben in stikstof een dracht van  $2,48 \text{ g/cm}^2$ . De afstand die door deze deutronen in stikstof onder een druk van 1 atmosfeer bij  $0^\circ\text{C}$  wordt afgelegd is gelijk aan 0,199 m. De lengte van het target moet dus groter zijn dan 0,199 m om een volledige afremming van de deutronen in het targetgas te bewerkstelligen. In werkelijkheid zal de door de deutronen afgelegde weg kleiner zijn dan 0,199 m omdat tijdens de bestraling het gastarget op lichte overdruk staat, ten gevolge van de dynamische drukval over het leidingensysteem dat op het target is aangesloten. Ook verliezen de deutronen een gedeelte van hun energie in het afschermfolie tussen gastarget en BGS, waardoor zij het gastarget betreden met een energie kleiner dan 5 MeV.

Om de verblijftijd van het gas in het target niet onnodig groot te maken is gekozen voor een lengte van 0,25 m. Deze lengte die groter is dan de dracht van 5 MeV deutronen in stikstof bij  $0^\circ\text{C}$ , werd gekozen om een volledige afremming van de deutronen ook bij een eventuele geringe dichtheidsafname door verhitting van het targetgas, mogelijk te maken. De inwendige diameter van het target is 0,014 m en het venster aan de voorzijde heeft een diameter van 0,013 m.

- materiaal van het gastarget

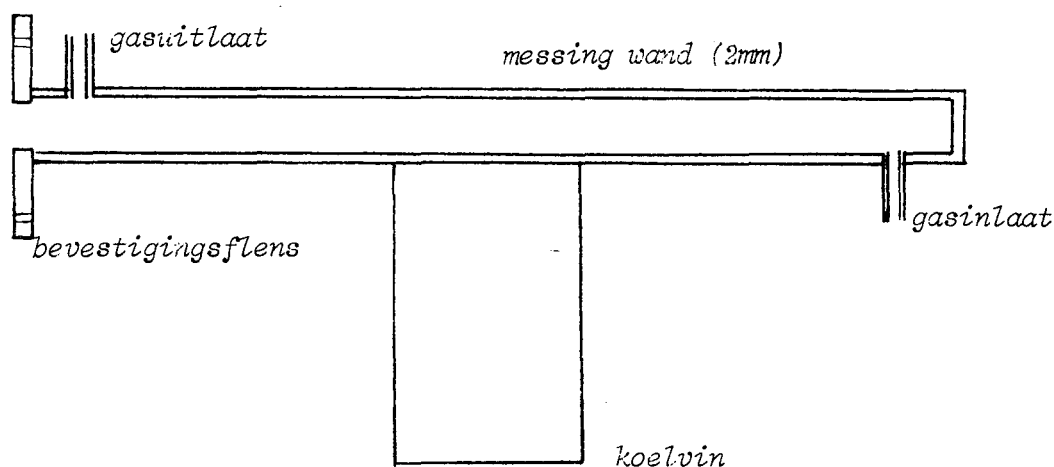
Het target is vervaardigd uit messing. Voor dit materiaal is gekozen nadat bleek dat een targetgashouder vervaardigd uit aluminium problemen gaf in verband met gesoldeerde onderdelen en de hardheid van het materiaal. Een voordeel van aluminium boven messing is dat aluminium bij bestraling met een deutronenbundel slechts kortlevende aktiveringsprodukten opleverd. De aktivering van messing bij bestraling met deutronen met een energie van 5 MeV zal echter niet groot zijn aangezien een groot aantal mogelijke aktiveringsreakties een drempelenergie hebben groter dan 5 MeV. In tabel 4.3-1 staan de meest waarschijnlijke aktiveringsreakties gegeven met hun drempelenergie ( $E_d$ ), en de gemiddelde waarde van de werkzame doorsnede tussen 0 en 5 MeV ( $\bar{S}$ ), en de halfwaardetijd van het reaktieprodukt ( $T_{\frac{1}{2}}$ ).

reaktie	$E_d$ (MeV)	$\bar{S}$ (mbarn)	$T_{\frac{1}{2}}$
$^{63}\text{Cu}(d, 2n)^{63}\text{Zn}$	6,6	0	38,5 m
$^{63}\text{Cu}(d, 3n)^{62}\text{Zn}$	16,0	0	9,3 h
$^{65}\text{Cu}(d, 2n)^{65}\text{Zn}$	4,5	15	245 d
$^{64}\text{Zn}(d, n)^{65}\text{Ga}$	0	?	8,0 m
$^{64}\text{Zn}(d, 2n)^{64}\text{Ga}$	10,4	0	2,6 m
$^{66}\text{Zn}(d, n)^{67}\text{Ga}$	0	50	78,2 h
$^{66}\text{Zn}(d, 2n)^{66}\text{Ga}$	8,4	0	9,4 h
$^{63}\text{Cu}(d, p)^{64}\text{Cu}$	0	20	12,8 h
$^{65}\text{Cu}(d, p)^{66}\text{Cu}$	0	20	5,1 m
$^{64}\text{Zn}(d, p)^{65}\text{Zn}$	0	?	245 d

tabel 4.3-1 enkele waarschijnlijke aktiveringsreakties bij de bestraling van messing met deutronen

- targetkoeling

Om een eenvoudige koeling van het target te verkrijgen is aan het target een "koelvin" bevestigd bestaande uit een messing blok van 0,01 m dikte, met een lengte van 0,10 m en een breedte van 0,05 m. Tijdens de bestraling wordt dit blok gedompeld in smeltend ijs. De temperatuur van het target wordt gemeten m.b.v. een Pt/Pt-10%Rh thermokoppel dat aan de targetwand is bevestigd. In figuur 4.3-1 is een lengte doorsnede van het gastarget gegeven.

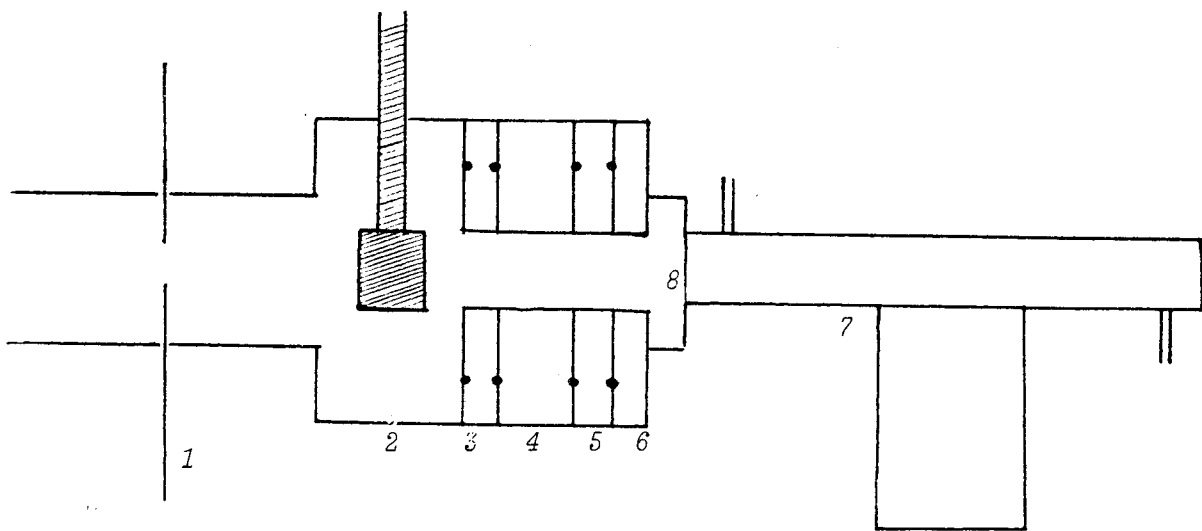


figuur 4.3-1 lengtedoorsnede van het gastarget  
 schaal: 1:2  
 ─── 2 cm

- koppeling van het gastarget aan het bundelgeleidingssysteem

Tijdens de produktie van  $^{15}\text{O}$  is het gastarget gekoppeld aan het BGS in bunker 4A in de cyclotronhal. In deze bunker, die ook gebruikt wordt voor de routinematige produktie van  $^{81}\text{Rb}/^{81\text{m}}\text{Kr}$  generatoren, is een bestralingsopstelling aanwezig die onder andere bestaat uit een diafragma, een op afstand te bedienen bundelstop, en het (uitwisselbare) gastarget. In figuur 4.3-2 is een schematische weergave van deze opstelling gegeven. Het diafragma bestaat uit 4 grafiet segmenten die samen een rond gat met een diameter van 10 mm openlaten. Op ieder segment kan de opvallende bundelstroom worden gemeten, zodat bij een bestraling de bundel met dit

diafragma kan worden uitgericht en een homogene bundelintensiteitsverdeling kan worden verkregen. Op de neergelaten bundelstop kan de grootte van de bundelstroom na het diafragma worden gemeten. Na de bundelstop is een Delrin ring bevestigd die de verdere opstelling elektrisch isoleert van het bundelgeleidingssysteem. Vervolgens is er een aluminium tussenring geplaatst waarop stroommeting mogelijk is. De gemeten bundelstroom op deze tussenring is indicatie voor de ligging van de bundel achter de bundelstop. Een tweede Delrin ring zorgt voor de elektrische isolatie tussen het gastarget en de aluminium tussenring, zodat ook stroommeting op het gastarget mogelijk is. Het gastarget is met behulp van een roestvrijstalen koppelflens aan deze laatste Delrin ring bevestigd. Tussen de roestvrijstalen koppelflens en het gastarget bevindt zich een 10  $\mu$ m dik Duratherm-600 folie, dat de scheiding tussen het vacuüm in het bundelgeleidingssysteem en het stikstofgas in het gastarget vormt.



- |                |                                 |
|----------------|---------------------------------|
| 1) diafragma   | 5) Delrin ring                  |
| 2) bundelstop  | 6) RVS koppelflens              |
| 3) Delrin ring | 7) gastarget                    |
| 4) Al ring     | 8) Duratherm folie (10 $\mu$ m) |

figuur 4.3-2 schematische voorstelling van de bestralingsopstelling in bunker 4A

- invloed van het vacuümfolie op de bundeleigenschappen

Het Duratherm-600 folie wat noodzakelijk is voor het in stand houden van het vacuüm in het bundelgeleidingssysteem, zal tot gevolg hebben dat de invallende deuteronen van 5 MeV gedeeltelijk worden afgeremd, en dat verstrooiing van de bundel zal optreden.

Beide effecten kunnen een nadelige invloed hebben op de beoogde productie van  $^{15}\text{O}$ . We zullen de invloed van deze effecten nader beschouwen.

a) afremming van de deuteronen in het vacuümfolie

Duratherm-600 is een metaallegering van de volgende samenstelling:

kobalt	-	41,5 gew.%
nikkel	-	25,5 gew.%
chrom	-	12,5 gew.%
ijzer	-	10,1 gew.%

De overige 10,4 gew.% is samengesteld uit kleinere hoeveelheden Mo, W, Ti en Al.

Het soortelijk gewicht van Duratherm-600 bedraagt  $8,45 \text{ g/cm}^3$ .

Een 10  $\mu\text{m}$  dik folie heeft dus een dikte van  $8,5 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^2$ .

Met behulp van de tabellen voor range en stopping power gegeven door Williamson e.a. (WIL66) is aan te tonen dat een 5 MeV deutron in het folie zal worden afgeremd tot een energie van ongeveer 4,3 MeV.

In tabel 4.3-2 staan de drachten van 5 en 4,3 MeV deuteronen voor die elementen welke in de tabellen van Williamson e.a. gegeven zijn, en die het meest met de elementen die in Duratherm-600 voorkomen voor wat de Z-waarde betreft overeen komen, gegeven.

element	R-5 ( $\text{g/cm}^2$ )	R-4,3 ( $\text{g/cm}^2$ )	dR ( $\text{g/cm}^2$ )
Fe	$4,40 \cdot 10^{-2}$	$3,50 \cdot 10^{-2}$	$9,0 \cdot 10^{-3}$
Ni	$4,43 \cdot 10^{-2}$	$3,54 \cdot 10^{-2}$	$8,9 \cdot 10^{-3}$
V	$4,30 \cdot 10^{-2}$	$3,42 \cdot 10^{-2}$	$8,8 \cdot 10^{-3}$
Al	$3,24 \cdot 10^{-2}$	$2,54 \cdot 10^{-2}$	$7,0 \cdot 10^{-3}$
Ta	$8,39 \cdot 10^{-2}$	$6,79 \cdot 10^{-2}$	$16,0 \cdot 10^{-3}$

tabel 4.3-2 de dracht van deuteronen met een energie van 5 MeV (R-5) en 4,3 MeV (R-4,3) en het verschil (dR) voor enkele elementen

b) verstrooiing van deutronen aan het vacuümfclie

De verstrooiing van geladen deeltjes aan een folie kan worden berekend met behulp van formule 4.3-1 (MAR67)(MAR68)

$$\theta_{1/e} = x_c \cdot (0,865 + 0,340 \cdot b - 8,88 \cdot 10^{-3} \cdot b^2) \quad 4.3-1$$

waarin  $\theta_{1/e}$  de halve tophoek is van de kegel waarbij op de rand de intensiteit is afgenomen tot de waarde 1/e van de intensiteit in voorwaartse richting.

Voor  $x_c$  geldt de relatie:

$$x_c = 0,0392 \cdot (Z(Z+1)z^2 \cdot d/AE^2) \quad 4.3-2$$

met  $Z$  = atoomnummer verstrooiend medium

$z$  = atoomnummer verstrooid deeltje

$d$  = dikte verstrooiend medium ( $\text{g}/\text{cm}^2$ )

$A$  = massagetal verstrooiend medium

$E$  = intree energie verstrooid deutron (MeV)

Voor  $b$  geldt de relatie:

$$b = \ln((Z+1)Z^{1/3} \cdot d/AE) + 14,60 \quad 4.3-3$$

waarbij de gebruikte symbolen dezelfde betekenis hebben als in formule 4.3-2.

de voor  $b$  gegeven relatie is alleen dan geldig wanneer de intree energie van het deutron veel kleiner is dan de rustenergie van het deutron ( $E_0 = 1875,6$  MeV)

Voor een Duratherm-600 folie geldt:  $Z_{\text{gem}} = 27,6$  en  $A_{\text{gem}} = 59,8$

Deze getalwaarden invullend in de hierboven gegeven formules geeft, voor 5 MeV deutronen:

$$\theta_{1/e} = 4,1 \cdot 10^{-2} \text{ radiaal}$$

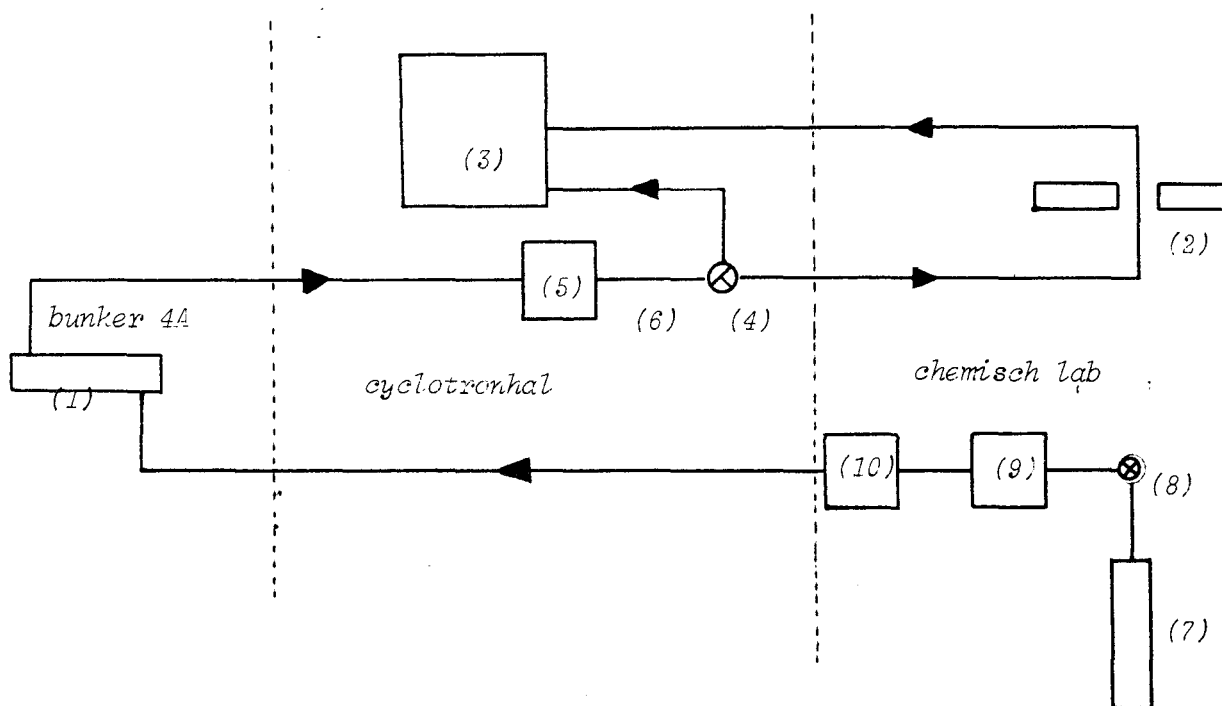
Een halve tophoek van 41 mrad houdt in dat de 1/e verstrooiingskegel de wand van het target gaat raken op een afstand van 17 cm van het intreevenster. Op deze afstand hebben de deutronen hun energie echter reeds volledig afgestaan. De dracht van 4.3 MeV deutronen in stikstof-

gas van 1 atmosfeer bij  $0^{\circ}\text{C}$  bedraagt 15,8 cm

De schatting van de invloed van de verstrooiing is hier echter te optimistisch genomen. Er wordt in de formules voor de verstrooiing uitgegaan van een puntsymetrie van de bundel die op het folie valt. In werkelijkheid heeft de bundel een gemiddelde diameter van ongeveer 7 mm. Ook is er geen rekening gehouden met de verstrooiing aan het gas in het target. Hierdoor zal de werkelijke verstrooiing groter zijn dan in bovenstaande is afgeleid, en wellicht van niet te verwaarlozen belang zijn.

Zowel de afremming in, als de verstrooiing aan het folie, neemt toe met de foliedikte. Het is dus wenselijk een zo dun mogelijk folie te gebruiken. De mechanische treksterkte van het folie laat echter geen geringere dikte dan 10  $\mu\text{m}$  toe. (CLE32).



4.4 transportleidingen voor het targetgas

figuur 4.4-1 schematische voorstelling van de loop van de transportleidingen tussen produktie- en meetopstelling.

in de onderstaande tekst wordt verwezen naar de in de figuur geplaatste cijfers

Het transport van het targetgas tussen bunker 4A waar het gastarget (1) staat opgesteld, en het chemisch lab waar de meetopstelling (2) zich bevindt, gaat via koperen leidingen en PVC-slangen met een inwendige diameter van 4 mm. Het van de meetopstelling terugkomende gas wordt via PVC-slangen geleid naar een afsterfvat (3) met een inhoud van 220 liter, dat zich bevindt in de cyclotronhal in bunker 4B. De mogelijkheid is aanwezig om het van het target afkomende gas via een driewegkraan (4), en een kortsluitleiding rechtstreeks naar het afvalvat te sturen. Eventueel te gebruiken absorbers (5) zijn geplaatst in de cyclotronhal, buiten bunker 4A, en voor de aftakking naar de kortsluitleiding. Het gedeelte van de leiding tussen gastarget en absorbers is geheel vervaardigd van koper. Na de absorbers is een monstername punt (6) ingebouwd voor het nemen van imi gasmonsters ten behoeve van radiogaschromatografie metingen (zie 4.8).

De gasaanvoer naar het target wordt geregeld door een hoge-druk gasfles (7)

met reduceerventiel (8) welke in het chemisch lab staat. Tevens zijn een silica gasdroogkolom (9) en een debietmeter (10) in het leidingstelsel opgenomen.

De totale drukval over het stelsel bedraagt bij een gasdebiet van 3000 cm<sup>3</sup>/min ongeveer 0,5 atmosfeer.

#### 4.5 meetopstelling voor de bepaling van produktieopbrengst, radionuklidische zuiverheid en radiochemische zuiverheid

De in het gastarget bestraalde gassen worden onderzocht op radionuklidische zuiverheid, aktiviteitsconcentratie en chemische samenstelling.

Voor dit doel is een meetopstelling gebouwd die in figuur 4.5-1 schematisch is weergegeven.

Het hart van de opstelling bestaat uit twee 3"NaI-kristallen met fotomultiplicator (Philips P.W. 4219/40) die onder een hoek van 180° staan opgesteld. De meetleiding waardoor het aktieve gas stroomt, loopt tussen beide detektoren door, en kan met behulp van op afstand te bedienen magneetkleppen worden afgesloten (zie 4.7)

Iedere detektor is aangesloten op een hoogspanningsvoeding met signaalversterker (Philips P.W. 4221), die ieder weer zijn verbonden met een een-kanaalsanalysator (Philips P.W.4280). De een-kanaalsanalysatoren zijn voorzien van een dubbele signaaluitgang. Op één uitgang is een pulsteller met display (Philips P.W. 4234) aangesloten. De andere uitgang is verbonden met een coïncidentiecircuit (Philips P.W. 4291).

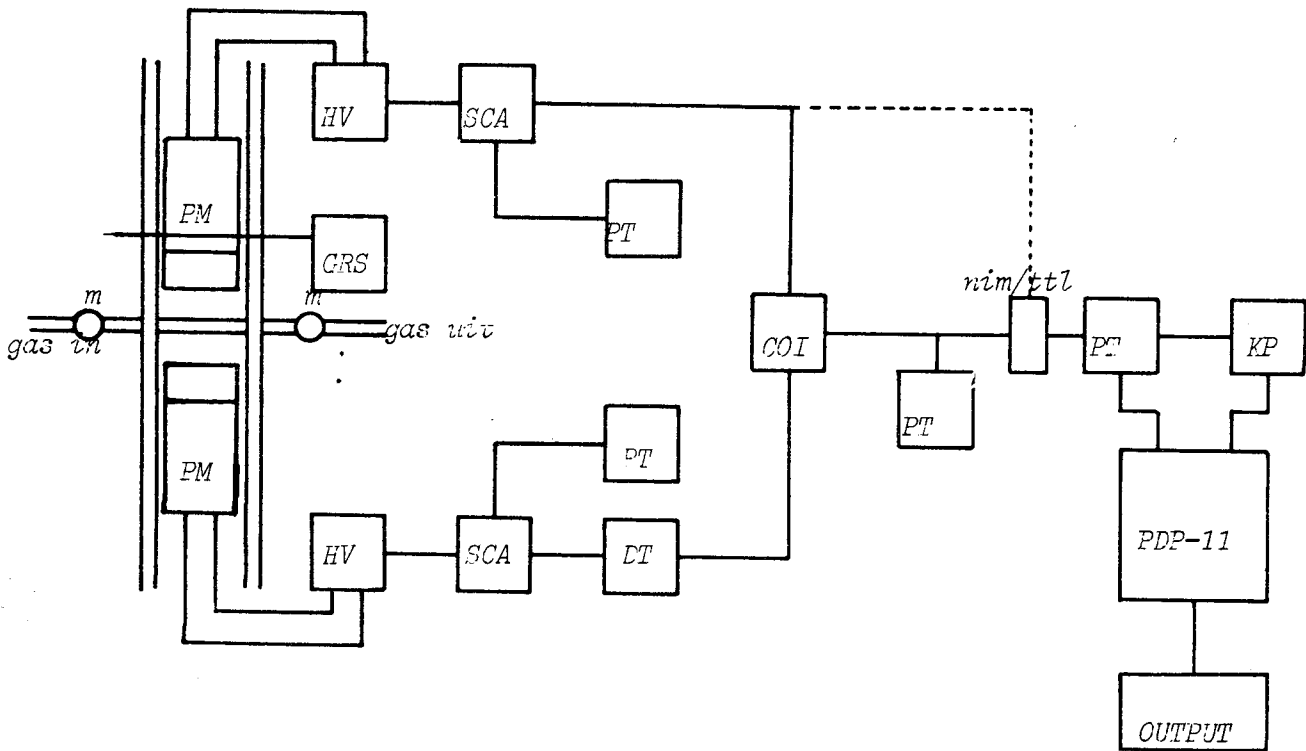
Het coïncidentiecircuit kan worden aangesloten op eenzelfde type scaler als bij de een-kanaalsanalysatoren het geval is, of hij kan via een pulsomvormer (NIM/TTL) worden verbonden met een scaler (N.E Quad 709-2) die via een PDP-11 minicomputer kan worden gestuurd en uitgelezen. Ook is het mogelijk om de uitgang van een een-kanaalsanalysator met deze laatste scaler te verbinden.

De beide NaI-detektoren zijn opgesteld binnen een loodkasteel met een wanddikte van 0,05 m, om detektie van achtergrondstraling te reduceren. De energievensters van de een-kanaalsanalysatoren zijn ingesteld op de piek behorende bij de door positronemitters uitgezonden 511 keV annihilatiestraling.

Voor de verwerking van de meetresultaten m.b.v. de PDP-11 minicomputer is het programma VERME geschreven.

De bepaling van de chemische vorm waarin het geproduceerde <sup>15</sup>O in het gas aanwezig is, gebeurt m.b.v. een radiogaschromatograaf (zie 4.8).

figuur 4.5-1 schematische voorstelling van de meetopstelling



- PM : NaI-detektor + fotomultiplicator  
 HV : hoogspanningsvoeding  
 SCA : een-kanaals analysator  
 PT : pulsteller  
 DT : tijdsvertraging  
 COI : coincidentie circuit  
 KP : klokpuls generator  
 PDP : mini computer  
 GRS : radiogaschromatograaf  
 m : magneetklep  
 nim/ttl : pulsomvormer  
 OUTPUT : monitorscherm/plotter/printer/floppy-disk

#### 4.6 ijking van de coïncidente meetopstelling t.b.v. opbrengst bepalingen

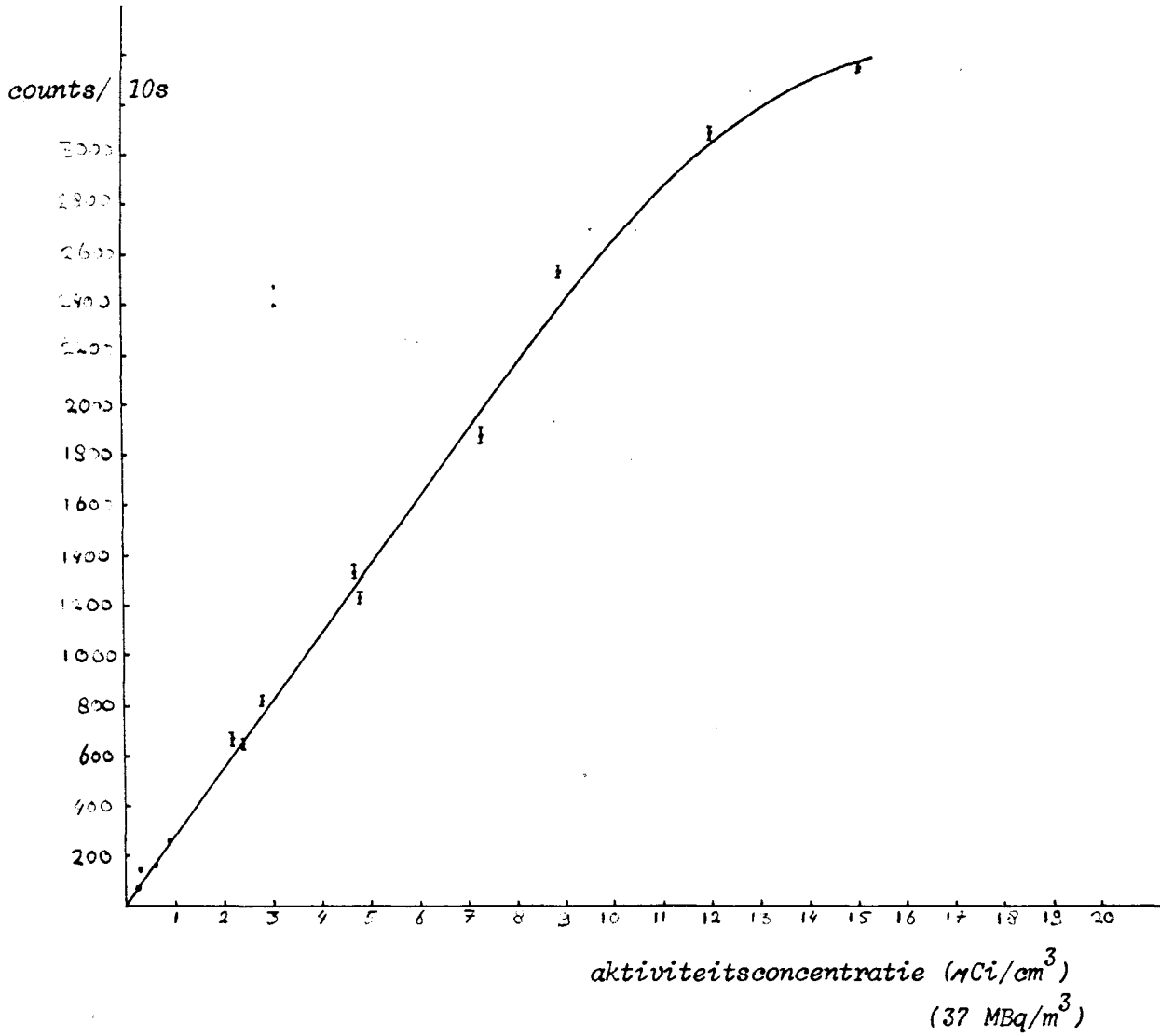
In 4.5 is vermeld dat de meetleiding waardoor het gas met radioactief zuurstof stroomt, tussen de beide NaI-detektoren wordt doorgeleid. Het gedeelte van deze leiding dat zichtbaar is voor beide detektoren heeft een lengte van 0,11 m en een inhoud van 13,8 cm<sup>3</sup>. Dit gedeelte van de leiding is omgeven door een koperen huls, zodat alle uitgezonden beta-plus deeltjes zullen annihilieren. Om de omzetting tussen het gedetekteerde coïncidente teltempo, en de aktiviteitsconcentratie in het gas mogelijk te maken, is een ijking verricht.

Als ijkbronnen werden oplossingen van <sup>22</sup>Na gebruikt van verschillende bekende aktiviteit, en met eenzelfde geometrie als de later te gebruiken meetleiding. De aktiviteit van deze bronnen werd bepaald m.b.v. een geijkte Ge(Li) halfgeleiderdetektor aangesloten op een meerkanaalspulshoogte-analysator.

<sup>22</sup>Na heeft een halfwaardetijd van 2,60 jaar, en vervalt naar het stabiele <sup>22</sup>Ne. Voor 99,95 % gaat dit verval via het 1274,6 keV niveau van <sup>22</sup>Ne na positron-emissie (90%) of elektron capture (10%).

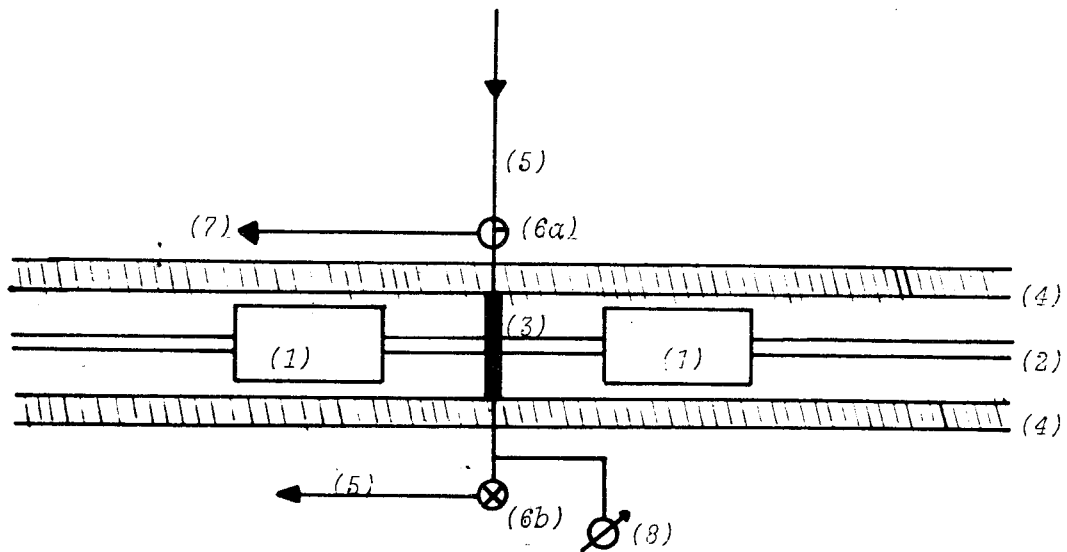
De curve die bij de ijking van de opstelling werd verkregen staat gegeven in figuur 4.6-2. Langs de ordinaat staat het coïncidente teltempo per 10 seconden uitgezet, en langs de abscis de aktiviteitsconcentratie in  $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$  (37 MBq/m<sup>3</sup>), waarbij gecorrigeerd is voor het feit dat <sup>22</sup>Na niet voor 100% vervalt via een positron emissie en <sup>15</sup>O wel. Uit de curve volgt dat het teltempo versus de aktiviteitsconcentratie een lineair verband heeft tot aan een concentratie van ca. 10  $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$  (370 MBq/m<sup>3</sup>). Boven deze concentratie gaat de dode tijd van het detektiesysteem een zodanige rol spelen, dat een duidelijke afwijking van het lineaire verloop zichtbaar is.

figuur 4.6-2 coïncident teltempo (counts/10 s) versus de  
aktiviteitsconcentratie in de meetleiding



#### 4.7 bepaling van productieopbrengst en radionuclidische zuiverheid

Een bovenaanzicht van het gedeelte van de meetopstelling waar de twee NaI- detectoren staan opgesteld, geeft het beeld van figuur 4.7-1



figuur 4.7-1 bovenaanzicht NaI-detectoren opstelling

*in de onderstaande tekst wordt verwezen naar de in de figuur gegeven cijfers*

De beide NaI-detectoren (1) staan op een geleiderail (2) onder een hoek van  $180^\circ$ . De afstand tussen de detectoren en de positron converter (3) bedraagt 0,2 m. De detectoren zijn afgeschermd door middel van een loodlaag van 0,05 m (4), om detectie van achtergrondstraling te reduceren. De gasdoorvoerleiding (5) die van het target afkomt loopt door de converter (3) tussen beide detectoren door. Met behulp van de op afstand te bedienen magneetkleppen (6a en 6b) kan de leiding tussen deze kleppen in worden afgesloten. Magneetklep 6a, welke een driewegklep is, stuurt het aangeboden gas dan via een kortsluitleiding (7) naar het afsterfvat in bunker 4B. De gasdruk in het leidinggedeelte afgesloten door beide kleppen, is af te lezen op de aangesloten drukkemeter (8).

- bepaling van de produktieopbrengst

Tijdens de produktie komt het bestraalde gas via leiding 5 de meetkamer tussen beide NaI-detektoren binnen. Het coïncidentiecircuit is aangesloten op de via de PDP-11 bediende scaler, welke continu kan worden uitgelezen. Op de monitor van de PDP-11 kan worden vastgesteld of een stationaire toestand in het produktieproces is bereikt.

Met behulp van de ijkcurve uit figuur 4.5-2 is de aktiviteitsconcentratie ( $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ ), van het door de meetleiding stromende gas, direkt afleesbaar. Na bepaling van de verblijftijd in het leidingensysteem tussen gastarget en meetkamer, waardoor correctie voor het natuurlijk verval mogelijk wordt, en vermenigvuldiging met het gebruikte targetgasdebiet ( $\text{cm}^3/\text{s}$ ), is het produktietempo ( $\mu\text{Ci}/\text{s}$ ) aan de uitgang van het target te berekenen. De verblijftijd in het leidingensysteem is te bepalen d.m.v. een blokpuls responsie meting (zie 5.2)

- bepaling van de radionuklidische zuiverheid

Het bestraalde gas wordt op twee wijzen onderzocht op radionuklidische zuiverheid, te weten;

- 1) d.m.v. vervalcurve analyse
- 2) d.m.v. gamma-pulshoogteanalyse met een meerkanaalspulshoogteanalysator en een Ge(Li) halfgeleider detektor

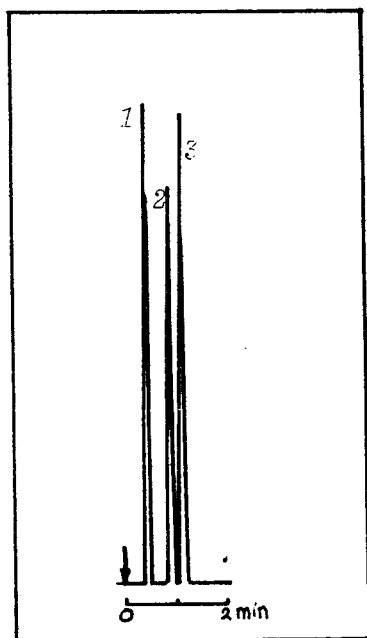
De vervalcurve analyse kan "on-line" tijdens de produktie worden uitgevoerd, en geeft de mogelijkheid de relatieve opbrengsten van de in het bestraalde gas aanwezige positronemitters te bepalen. Het opnemen van de vervalcurve gebeurt na het sluiten van de magneetkleppen 6a en 6b (figuur 4.7-1) en door het volgen van het aktiviteitsverloop van het in de meetleiding ingesloten gas als functie van de tijd. Een vervalcurve bestaat uit maximaal 2000 intervallen met een variabele teltijd tussen 1 en 30.000 seconden/interval.

Bij een gamma-pulshoogteanalyse met behulp van een Ge(Li) halfgeleider detektor en een daarop aangesloten meerkanaalspulshoogteanalysator kunnen gamma-emiterende radionukliden welke geen positronemitters zijn in het bestraalde gas worden aangetoond c.q. bepaald.

#### 4.8 bepaling van de radiochemische zuiverheid

De bepaling van de radiochemische zuiverheid van de bestraalde gassen wordt uitgevoerd met behulp van een radiogaschromatograaf die voor dit doel is gebouwd. Deze chromatograaf bevat twee gaschromatografiekolommen. De eerste is een 8' x 1/8" roestvast staal chromosorb-101 kolom, die de scheiding van o.a. lucht ( $N_2/O_2$ ),  $CO_2$  en  $N_2O$  mogelijk maakt.

In figuur 4.8-1 is een voorbeeld van een chromosorb-101 chromatogram afgebeeld zoals gegeven wordt door de fabrikant (Chrompack Nederland B.V.)



componenten: 1) lucht  
2)  $CO_2$   
3)  $N_2O$

temperatuur: 45 C

draaggas : He (25 ml/min)

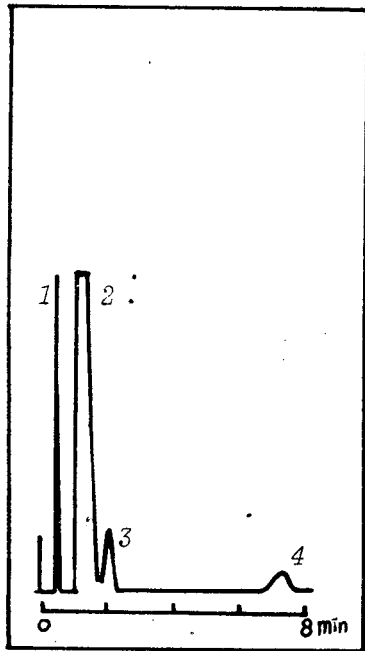
detektor : thermal conductivity detector (TCD)

figuur 4.8-1 voorbeeld van een chromosorb-101 chromatogram  
zoals gegeven door Chrompack Nederland B.V.

De tweede kolom is een 8' x 1/8" roestvast staal Molecular Sieve 13X kolom welke volgens fabrieksopgave (Chrompack Nederland B.V) een scheiding geeft van de componenten  $O_2$ ,  $N_2$ ,  $CH_4$  en  $CO$ .



In figuur 4.8-2 is een voorbeeld van een Molecular Sieve 13X kolom afgebeeld, zoals dit door de genoemde fabrikant wordt opgegeven.



componenten: 1)  $O_2$   
 2)  $N_2$   
 3)  $CH_4$   
 4)  $CO$

temperatuur: 35 C  
 draaggas : He (20 ml/min)  
 detector : TCD

figuur 4.8-2 voorbeeld van een Molecular Sieve 13X chromatogram  
 zoals gegeven door Chrompack Nederland B.V.

Een ijking van beide detectoren met inaktieve gassen en een katarometer detector (op de afdeling der scheikundige technologie aan de THE), heeft aangetoond dat de chromosorb-101 kolom ook in staat is  $NO_2$  te scheiden van de eerder genoemde componenten. De retentietijd van  $NO_2$  ligt bij deze kolom tussen de retentietijden van lucht en  $CO_2$  in.

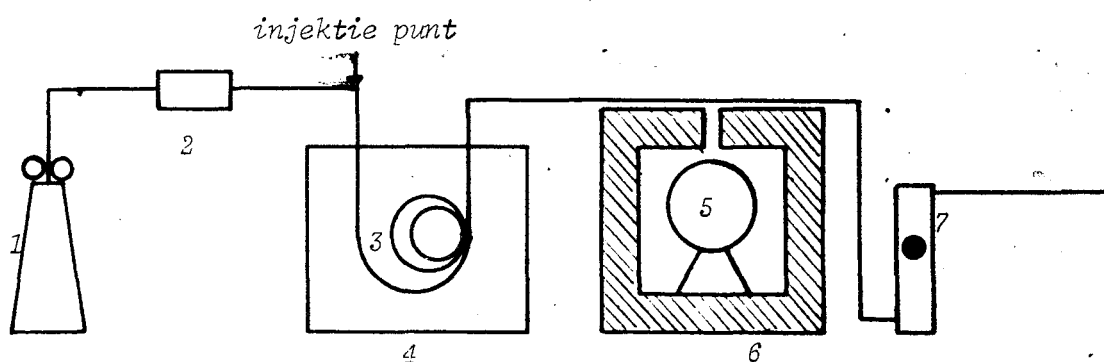
Beide kolommen zijn geplaatst in een thermostaatbak waarin de temperatuur op  $1^\circ C$  nauwkeurig constant kan worden gehouden in het gebied tussen  $20^\circ C$  en  $75^\circ C$ . De benodigde He-draaggasstroom wordt verzorgd door een hoge druk gasfles met heliumgas, en een reduceerventiel. Het draaggas wordt alvorens in de chromatografiekolom te worden geleid, gedroogd met behulp van een moleculaire zeef.

De uitgang van beide kolommen wordt via een dunne koperen leiding geleid over één van de beide NaI-kristallen. (zie fig,4.8-3)

Een nauwe spleet in de loodomhulling van de detector maakt de detektie van de in de kolom gescheiden pieken mogelijk. De op deze NaI-detektor aangesloten een-kanaalsanalysator wordt in dit geval verbonden met de door de PDP-11 uitleesbare scaler.

Omdat de detektie van de gescheiden pieken berust op de detektie van activiteit, kunnen met deze opstelling alleen die componenten worden aangetoond welke gemerkt zijn met  $^{15}\text{O}$  of met eventuele radionuklidische verontreinigingen zoals bijvoorbeeld  $^{13}\text{N}$ .

Tijdens het werken met de radiogaschromatograaf wordt het signaal afkomstig van de in de chromatografiekolom gescheiden pieken, niet coïncident gemeten. Wanneer nu het van het target afkomende bestraalde gas naar het chemisch lab wordt geleid, zoals het geval is bij de opbrengst- en radionuklidische zuiverheidsmetingen, is het achtergrondteltempo erg hoog. De in de kolom gescheiden pieken konden nu niet meer als zodanig geïdentificiëerd worden, aangezien zij in de achtergrond verloren gingen. Daarom wordt bij het werken met de radiogaschromatograaf het bestraalde gas na eventueel eerst door een aantal absorbers te zijn geleid, via een kortsluitleiding rechtsteeks naar het afsterfvat gestuurd, (zie fig. 4.4-1)



- |                     |                     |
|---------------------|---------------------|
| 1) helium fles      | 5) NaI-detektor     |
| 2) moleculaire zeef | 6) lood afscherming |
| 3) kolom            | 7) gasdebiet meter  |
| 4) thermostaatbak   |                     |

figuur 4.8-3 schematische voorstelling van de gaschromatografie opstelling

Met behulp van een injectiespuit wordt uit de transportleiding, achter de eventuele absorbers, (zie fig. 4.4.1), een monster van 1 ml van het bestraalde gas genomen, en dit wordt geïnjecteerd in de He-draaggasstroom, aan het begin van de gaschromatografiekolom.

Het verkregen radiogaschromatogram kan met de PDP-11 worden verwerkt. Bij de aanwezigheid van meerdere pieken in het chromatogram, kunnen de onderlinge verhoudingen worden bepaald, waarbij een correctie wordt uitgevoerd voor het verval van  $^{15}\text{O}$  activiteit gedurende de verblijftijd in de kolom.

HOOFDSTUK 5 : MEETRESULTATEN

*In dit hoofdstuk worden de met de experimentele produktie- en meetopstelling verkregen resultaten t.a.v. de  $^{15}\text{O}$  en  $\text{C}^{15}\text{O}$  produktie gegeven en besproken. In de paragrafen 5.1 tot en met 5.4 wordt achtereenvolgens besproken: de radionuklidische zuiverheid, de radiochemische zuiverheid en de chemische verontreiniging.*

5.1 radionuklidische zuiverheid

Zoals in 4.5 is vermeld, werd de radionuklidische zuiverheid van de bestraalde gassen bepaald door middel van vervalcurve analyse en gamma-spectrometrie. De volgende resultaten werden hiermee verkregen:

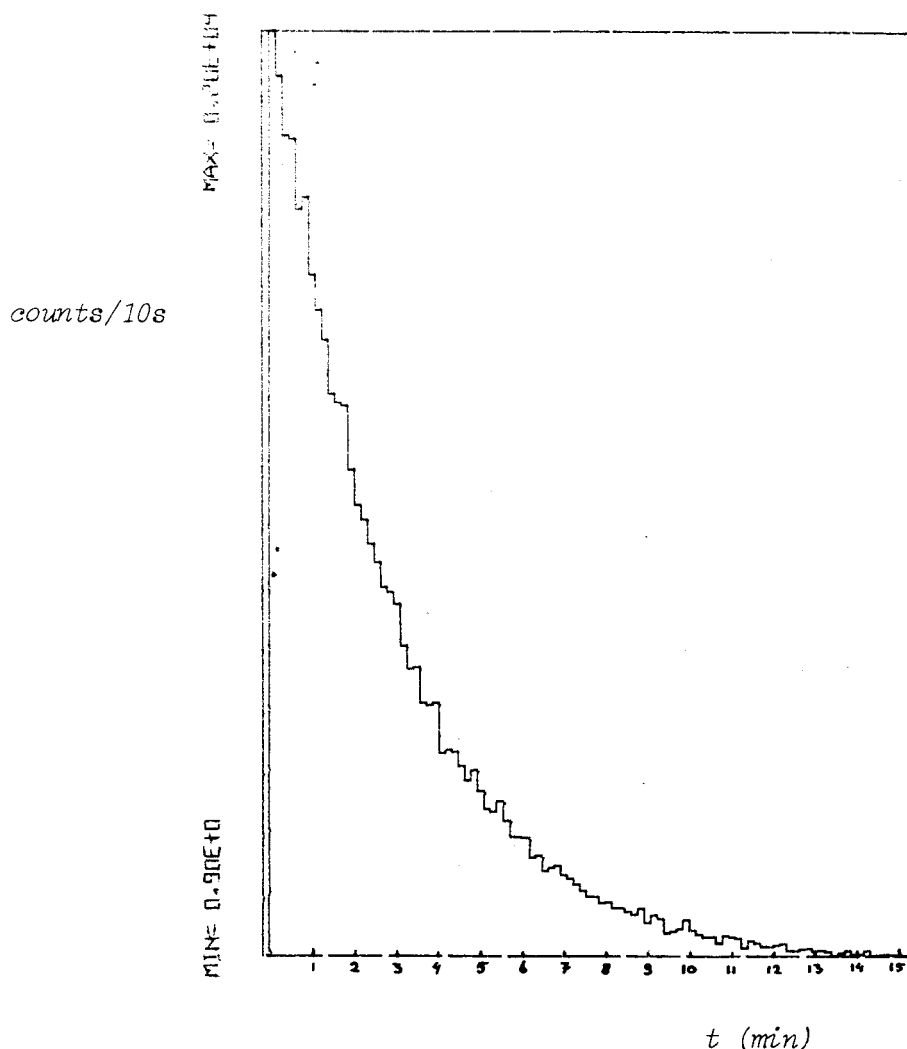
- vervalcurve analyse

Van de volgende met 5 MeV deutronen bestraalde targetgasmengsels werd een vervalcurve bepaald:

- 1) 99%  $\text{N}_2$  - 1%  $\text{O}_2$
- 2) 99%  $\text{N}_2$  - 1%  $\text{CO}_2$

De vervalcurven zijn opgenomen door met intervallen van 10 seconden coïncidente pulsen, afkomstig van de gesloten meetleiding te verzamelen (zie 4.5). Bij geen van de vervalcurven, afkomstig van de genoemde bestraalde gassen, is binnen de meetfout, een verschil vastgesteld tussen de uit de vervalcurven bepaalde hellingen van radioactief verval.

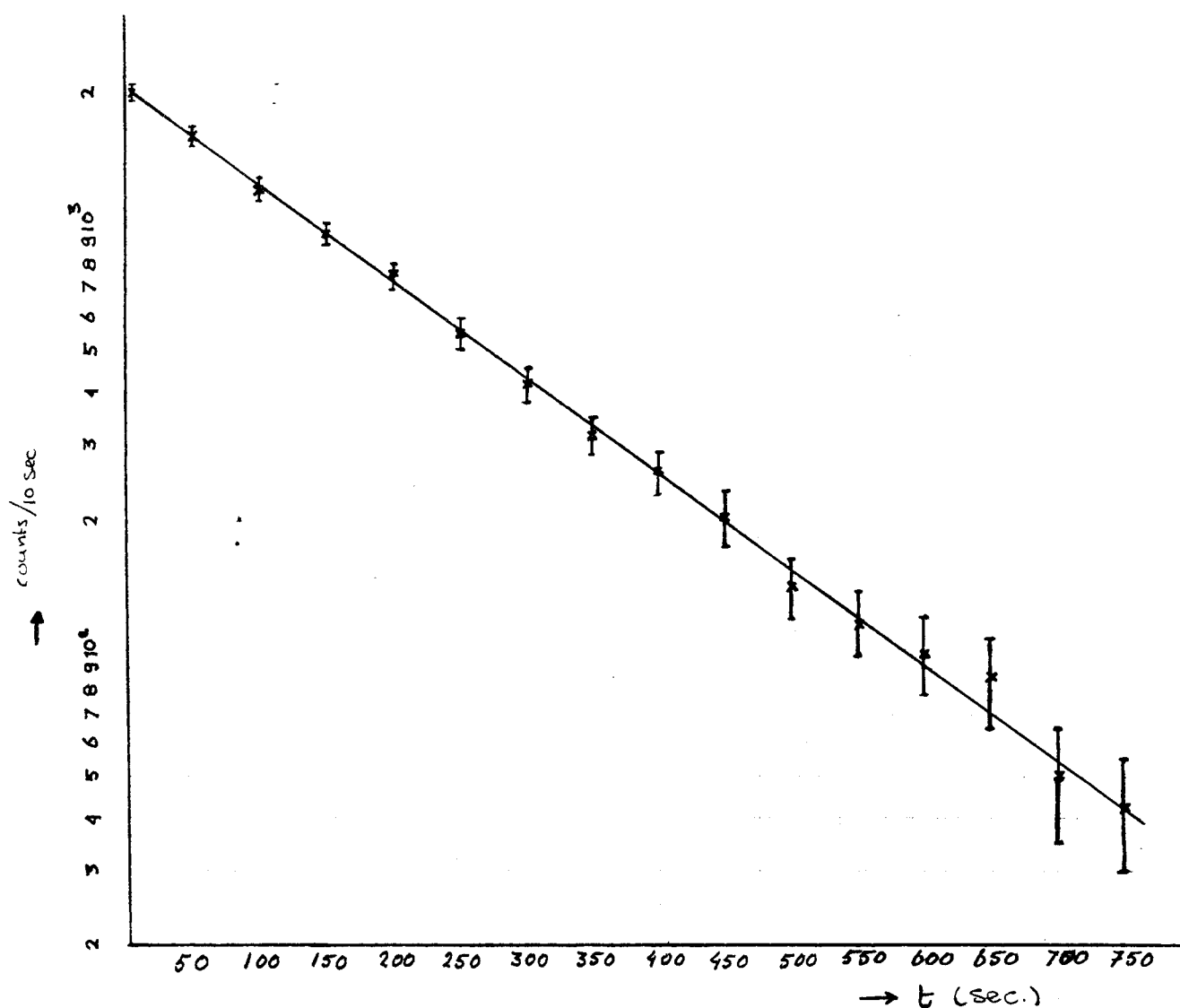
In figuur 5.1-1 is de vervalcurve gegeven van een met 5MeV deutronen bestraald targetgasmengsel bestaande uit 99%  $\text{N}_2$  en 1%  $\text{O}_2$ . De bundelstroom tijdens bestraling bedroeg 1  $\mu\text{A}$ .



figuur 5.1-1 vervalcurve van een met 5 MeV deuteronen bestraald  
gasmengsel bestaande uit 99%  $N_2$  en 1%  $O_2$

coïncident gedetecteerde gamma : 511 keV  
teltijd per interval : 10 s

In figuur 5.1-2 is dezelfde vervalcurve van figuur 5.1-1 gegeven. Langs de ordinaat staat nu het teltempo op logaritmische schaal uitgezet. Tevens is hier gecorrigeerd voor het achtergrond teltempo van ongeveer 5 pulsen/10 s . Correctie van de gemeten teltempi voor de dode tijd van de detectoren is niet noodzakelijk omdat, bij de hier gebruikte teltempi de verhouding activiteit tegen teltempo een lineair verloop kent ( zie fig. 4.6-2 )



figuur 5.1-2 vervalcurve van een met 5 MeV deutronen bestraald  
gasmengsel bestaande uit 99%  $N_2$  en 1%  $O_2$

Logaritmisch lineaire regressie toegepast op de gemeten teltempi als functie van de tijd, voor verschillende vervalcurven, leverde een halfwaarde tijd  $T_{1/2}$  op van  $130 \pm 10$  seconden. Voor deze onnauwkeurigheid in de bepaalde halfwaarde tijden is voornamelijk de statistische afwijking in de gemeten teltempi verantwoordelijk.

## - gamma spectrometrie

Een monster bestraald gas ( $125 \text{ cm}^3$ ) bestaande uit 99%  $\text{N}_2$  en 1%  $\text{O}_2$  is gemeten op een, aan een meerkanaals pulshoogte analysator aangeloten, Ge(Li) halfgeleider detektor. Deze is niet geplaatst in de cyclotronhal maar in gebouw "ATHENE", waardoor een minimaal tijdsverschil van 15 minuten tussen monsternamen en tijdstip van meting onvermijdelijk is.

Met gamma-spectrum analyse werd het volgende resultaat verkregen;

monsternamen	:	17.15 h
start meting 1	:	17.30 h
teltijd meting 1	:	1000 s
gedetekteerde pieken:		1) top op 511,6 keV inhoud 152744 counts
		2) top op 1023 keV inhoud 252 counts
		3) top op 1296,6 keV inhoud 249 counts

start meting 2	:	19.00 h
teltijd meting 2	:	1764 s
gedetekteerde pieken:		top op 1296,1 keV inhoud 249 counts

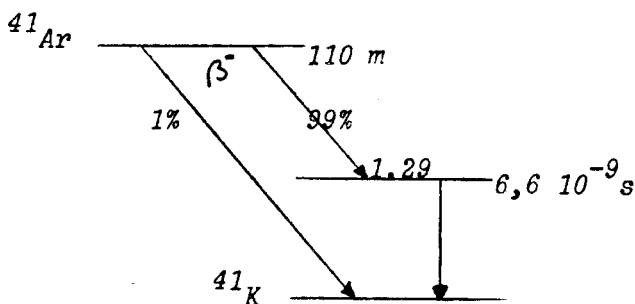
Behalve de gamma-annihilatie piek en de gamma annihilatie sommatie piek van 511 resp. 1022 keV, is er een derde gamma-piek aanwezig met zijn top op circa 1296 keV.

Met behulp van het tijdsverschil  $dt$  tussen de start van meting 1 en de start van meting 2, de teltijden  $T_1$  en  $T_2$  van de beide metingen, en de uit deze metingen verkregen piekinhouden van de 1296 keV piek ( $P_1$  en  $P_2$ ), is het mogelijk de halfwaardetijd van het 1296 keV gamma emitterende radionuklide te berekenen met;

$$t_{\frac{1}{2}} = dt \ln(2) / (\ln(P_1/T_1) - \ln(P_2/T_2)) \quad 5.1-1$$

Invoeren van de gemeten getalwaarden in formule 5.1-1 levert voor het onbekende radionuclide een halfwaardetijd  $t_{\frac{1}{2}}$  van 1.83 uur op.

Op grond van deze gegevens ( gamma-energie en halfwaardetijd ) nemen wij aan dat het onbekende radionuclide  $^{41}\text{Ar}$  is. Argon-41 heeft een halfwaardetijd van 1,83 uur, en vervalt voor 99% via een metastabiel 1,29 MeV niveau naar het stabiele  $^{41}\text{K}$ .



figuur 5.1.3  $^{41}\text{Ar}$  vervalschema

Uit de piekinhouden van het eerste meetspectrum, en rekening houdend met het verval aan  $^{15}\text{O}$  en  $^{41}\text{Ar}$  activiteit en het verschil in detektorefficiëntie voor de uitgezonden 511 keV en 1296 keV gamma-lijnen ( ongeveer 2:1), volgt dat de verhouding aan  $^{41}\text{Ar}$  activiteit en  $^{15}\text{O}$  activiteit in het bestraalde gas ongeveer gelijk is aan  $1:10^6$  aan de uitgang van het target.

#### - evaluatie meetresultaten radionuclidische zuiverheid

Op grond van tabel 3.3-1 zijn als radionuclidische verontreinigingen te verwachten:

- bij de bestraling van  $\text{N}_2/\text{O}_2$  mengsels met 5 MeV deutronen:
  - $^{16}\text{N}$  ( $t_{\frac{1}{2}} = 7,1\text{s}$ ) via de  $^{15}\text{N}(\text{d},\text{p})^{16}\text{N}$  reactie ( $^{15}\text{N}$  0,37% n.v.)
  - $^{17}\text{F}$  ( $t_{\frac{1}{2}} = 66\text{s}$ ) via de  $^{16}\text{O}(\text{d},\text{n})^{17}\text{F}$  reactie ( $^{16}\text{O}$  99,76% n.v.)
  - $^{18}\text{F}$  ( $t_{\frac{1}{2}} = 110\text{m}$ ) via de  $^{17}\text{O}(\text{d},\text{n})^{18}\text{F}$  reactie ( $^{17}\text{O}$  0,037% n.v.)



- bij bestraling van  $N_2/CO_2$  mengsels met 5 MeV deutronen;  
 $^{13}N$  ( $\tau_{\frac{1}{2}}=10m$ ) via de  $^{12}C(d,n)^{13}N$  reactie ( $^{12}C$  99,89% n.v)  
 en de bij  $N_2/O_2$  mengsels genoemde radionukliden

Stikstof-16 vervalt niet via  $\beta^+$  emissie, de overige 3 genoemde radionukliden wel.

#### - vervalcurve analyse

Met behulp van de coïncidentie vervalcurve metingen kunnen alleen radionukliden aangetoond worden die  $\beta^+$  emitters zijn, en een voldoende lange halfwaardetijd bezitten t.o.v. de transporttijd tussen gastarget en meetopstelling. Het achtergrondteltempo van de coïncidentie meetopstelling dat circa 0,2 % bedraagt van het teltempo bij de start van de vervalcurve meting, bepaalt de detectielimiet.

Met onze meetopstelling voor vervalcurve analyse is  $^{16}N$  niet aan te tonen. De andere verwachte radionuklidische verontreinigingen  $^{18}F$ ,  $^{17}F$  en  $^{13}N$  zijn wel aan te tonen, mits hun aktiviteitsconcentraties groter zijn dan circa  $10^{-3}$  maal de  $^{15}O$  aktiviteitsconcentratie.

Uit de gemeten vervalcurven volgt met lineaire logaritmische regressie een enkele halfwaardetijd van  $130 \pm 10$  seconden. Hieruit concluderen wij dat bij de bestraling van de genoemde gasmengsels onder onze condities geen van de  $\beta^+$  emitters  $^{18}F$ ,  $^{17}F$  en  $^{13}N$  in het gasmengsel voorkomt voor meer dan 0,2 % van de  $^{15}O$  aktiviteit op een tijdstip van ongeveer 50 seconden na EOB (met EOB wordt het tijdstip bedoeld waarop het gas het target verlaat). Het feit dat de fluor radioisotopen niet aangetoond zijn betekent niet dat zij in het target niet aangemaakt worden. Te verwachten is namelijk dat fluor, indien aangemaakt, aan de targethouderwand of aan de wand van de transportleiding tussen target en meetopstelling zal adsorberen. Zoals hierboven vermeld kan met behulp van deze meettechniek geen uitspraak worden gedaan over de aanwezigheid van  $^{16}N$  in het bestraalde gasmengsel.

#### - gamma spectrometrie

De grote afstand tussen de  $^{15}O$  produktie opstelling en de plaats waar de Ge(Li) detektor met meerkanaals pulshoogte analysator staat opgesteld maakte detektie van zeer kortlevende radionukliden als  $^{16}N$  ( $t_{\frac{1}{2}}=7,1s$ ) onmogelijk.

Wel blijkt uit de gamma pulshoogte analyse dat  $^{41}\text{Ar}$  in het bestraalde gas voorkomt (ca.  $10^{-6}$  maal  $0.15$  aktiviteit op EOB).

Argon-41 kan aangemaakt worden via de  $^{40}\text{Ar}(d,p)^{41}\text{Ar}$  reaktie of via de  $^{40}\text{Ar}(n,\gamma)^{41}\text{Ar}$  reaktie. De aanwezigheid van  $^{40}\text{Ar}$  in de bestraalde gasmengsels is aannemelijk omdat argon voor 0,93 vol.% in lucht voorkomt. De aanmaak van de radionuklidische verontreiniging  $^{41}\text{Ar}$  is te onderdrukken door gebruik te maken van zuiverdere  $\text{N}_2/\text{O}_2$  en  $\text{N}_2/\text{CO}_2$  gasmengsels. Andere radionuklidische verontreinigingen werden gamma spectrometrisch niet aangetoond.

## 5.2 produktieopbrengst metingen bij de $^{15}\text{O}$ en $\text{C}^{15}\text{O}$ produktie

De produktieopbrengst metingen zijn verricht op de wijze zoals in 4.5 is beschreven.

De aktiviteitsconcentratie in de meetleiding (mCi/ml) wordt bepaald met behulp van de in figuur 4.6-2 gegeven ijkcurve. Om het produktietempo (mCi/s) aan het uiteinde van het gastarget te berekenen kan gebruik gemaakt worden van de relatie:

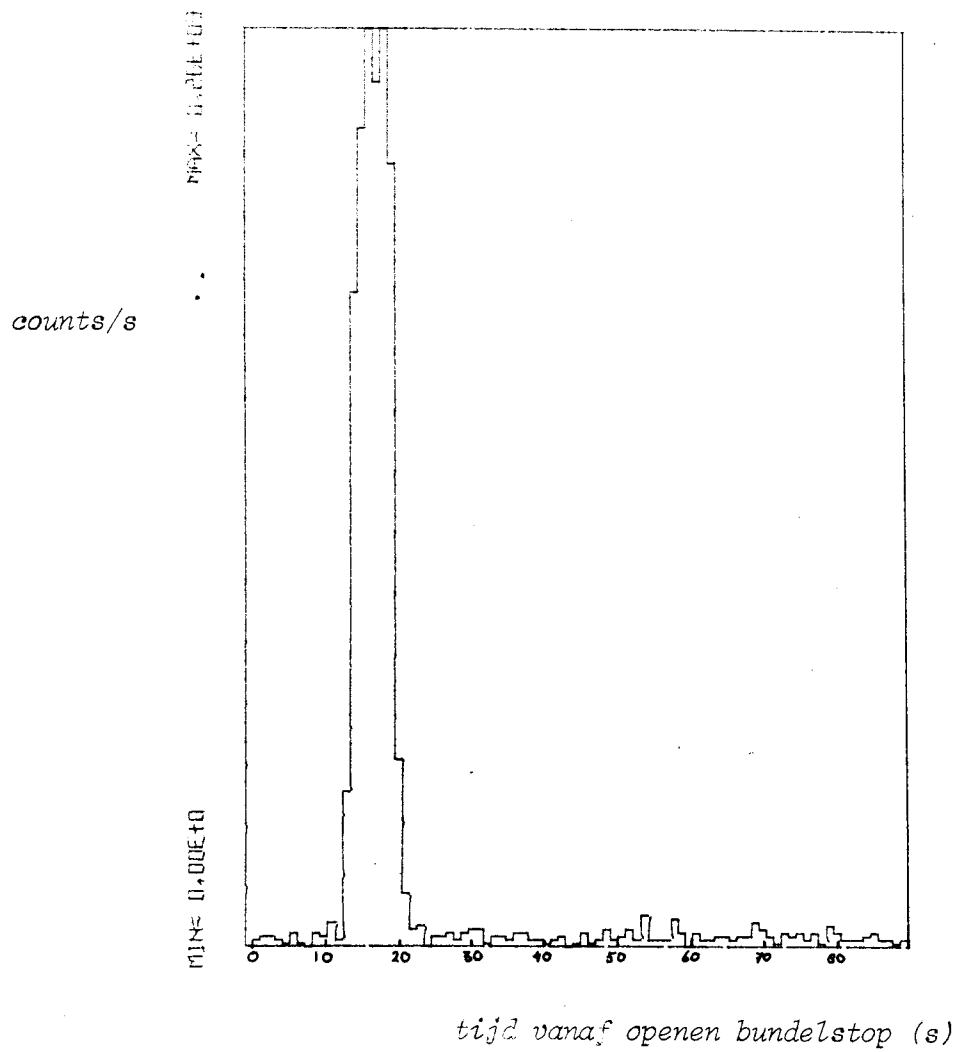
$$P(\text{mCi/s}) = C(\text{mCi/ml}) \cdot F(\text{ml/s}) \exp(+\lambda dt)$$

- met P : produktieopbrengsttempo EOB  
 C : aktiviteitsconcentratie in meetleiding  
 F : targetgasdebiet  
 dt : verblijftijd tussen gastarget en meetleiding  
 $\lambda$  : vervalconstante van  $^{15}\text{O}$

Bij de bepaling van C (mCi/ml) moet rekening worden gehouden dat figuur 4.6-2 is bepaald bij normale temperatuur en druk. Daarom is correctie voor de drukverhoging in de meetleiding t.g.v. de dynamische drukval over het systeem noodzakelijk. Deze drukverhoging kan op een op de meetleiding aangesloten drukketer worden afgelezen (fig.4.7-1).

Met behulp van een blokpuls respons bepaling wordt de verblijftijd van het bestraalde gas in het systeem tussen meetleiding en gastarget gemeten bij het gekozen targetgasdebiet. De blokpuls wordt verkregen door gedurende 5 seconden de bundelstop die zich voor het gastarget bevindt (fig 4.3-2)

te openen waardoor het targetgas gedurende deze 5 seconden wordt bestraald. In de meetleiding wordt het activiteitverloop als functie van de tijd gevolgd. In figuur 5.2-1 staat een dergelijke blokpulsresponsie gegeven.



figuur 5.2-1 blokpulsresponsie van het transportleidingensysteem tussen gastarget en meetleiding

meettijd per interval : 1 seconde

targetgasdebiet :  $3000 \text{ cm}^3/\text{min}$

verblijftijd gas : ca. 17 seconden

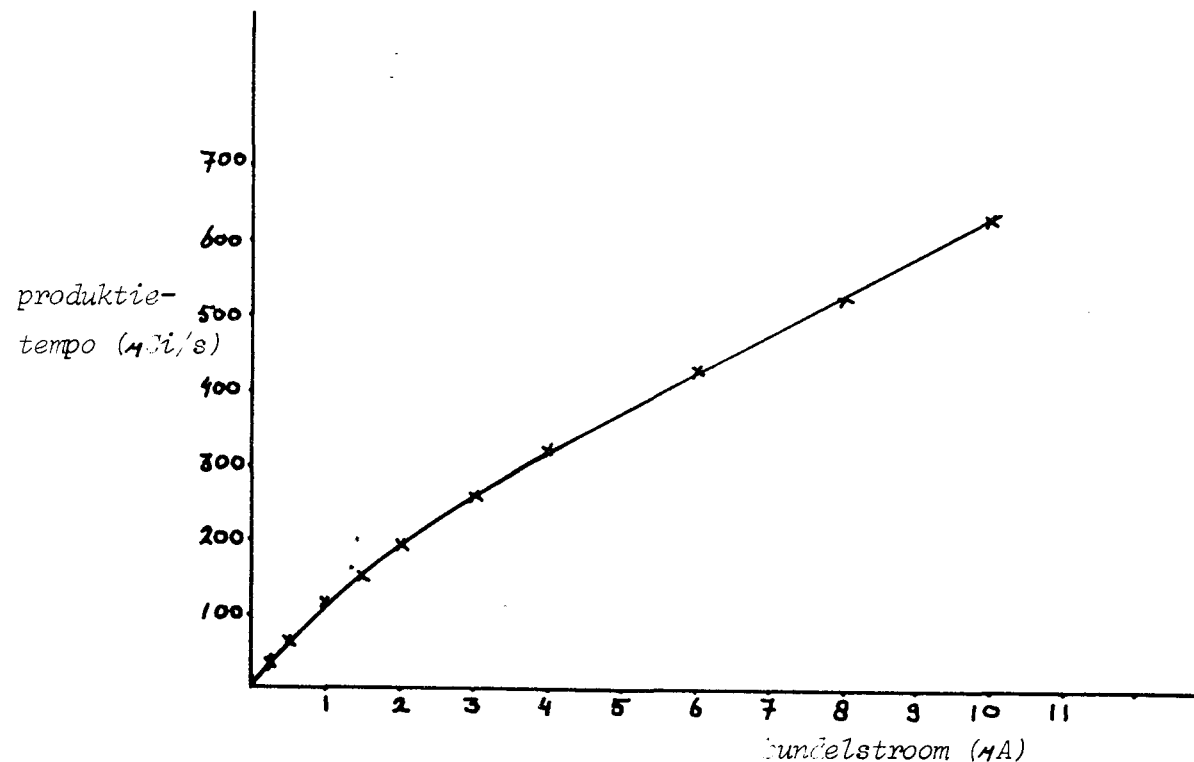
Opbrengst metingen werden verricht voor verschillende  $N_2/O_2$  gasmengsels bij verschillende bundelstromen. Het blijkt dat de opbrengst, binnen de meetfout, niet verandert met de aan het targetgas toegevoegde concentratie  $O_2$  in het gebied tussen 1% en 10%. Bij de bestraling van een targetgas bestaande uit 100%  $N_2$  is een significante daling in de opbrengst waarneembaar (zie tabel 5.2-1)

	2 $\mu A$	5 $\mu A$
10% $O_2$	6,3 $\pm$ 0,4	13,7 $\pm$ 0,4
4% $O_2$	7,2 $\pm$ 0,6	14,2 $\pm$ 0,4
1% $O_2$	7,0 $\pm$ 0,4	14,0 $\pm$ 0,4
0% $O_2$	2,4 $\pm$ 0,4	5,7 $\pm$ 0,4

*tabel 5.2-1 produktietempo (MBq/s) (27 Ci/s) aan targetuitgang voor verschillende toegevoegde percentages  $O_2$  bij bundelstromen van 2 en 5  $\mu A$ .*

Het verloop van de produktieopbrengst als functie van de bundelstroom is gegeven in figuur 5.2-2. Het bestraalde gas is een mengsel bestaande uit 99%  $N_2$  en 1%  $O_2$ . In het gebied tussen 0 en 2  $\mu A$  is een gasdebiet van 275  $cm^3/min$  gebruikt. In het gebied tussen 1 en 10  $\mu A$  is gebruik gemaakt van een gasdebiet van 3000  $cm^3/min$ . Het gebruik van een hoog debiet bij hoge bundelstromen was noodzakelijk omdat bij lage gasdebieten en hoge bundelstromen de detektoren in hun verzadigingsgebied geraakten (zie fig. 4.6-2). Om een goede vergelijking met de literatuur mogelijk te maken staat in figuur 5.2-2 het produktieopbrengsttempo gegeven in  $\mu Ci/sec$ . (37 kBq/s)

De produktieopbrengst aan  $^{15}O$  aktiviteit bij de  $C^{15}OO$  produktie werd gemeten bij bestraalde  $N_2/CO_2$  gasmengsels met een  $CO_2$  gehalte van 1%. De opbrengst was gelijk aan de opbrengst verkregen bij de  $^{15}OO$  produktie door middel van de bestraling van een 1 procentig  $N_2/O_2$  gasmengsel.



figuur 5.2-2 produktietempo aan targetuitgang (EOB) in  $\mu\text{Ci/sec}$  ( $37 \text{ kBq/s}$ ) als functie van de bundelstroom, bij een bestraling met 5 MeV deutronen van een 99%  $\text{N}_2$  - 1%  $\text{O}_2$  gasmengsel

- evaluatie van de productieopbrengst meetresultaten

De opbrengst bij de  $^{15}\text{O}$  productie blijkt nauwelijks te varriëren met het toegevoegde gehalte  $\text{O}_2$ , in het gebied tussen 1% en 10%. Op grond van de te verwachten chemische verontreinigingen (zie 5.4) is gekozen voor een zo laag mogelijk  $\text{O}_2$  gehalte bij de productie van  $^{15}\text{O}$ .

De productieopbrengst curve in figuur 5.2-2 toont een niet lineaire stijging van de opbrengst met toenemende bundelstroom. Een lineaire stijging is op grond van formule 2.3-7 te verwachten. Oselka e.a (OSE77) geven eenzelfde afwijking van het lineair gedrag als door ons is gemeten. In het betreffende artikel wordt de  $^{15}\text{O}$  opbrengst via de  $^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$  reactie besproken. Het artikel vermeldt echter niet onder welke bestrahlingscondities de productie heeft plaatsgevonden. Met name wordt niet vermeld of de deutronenbundel volledig in het target wordt gestopt.

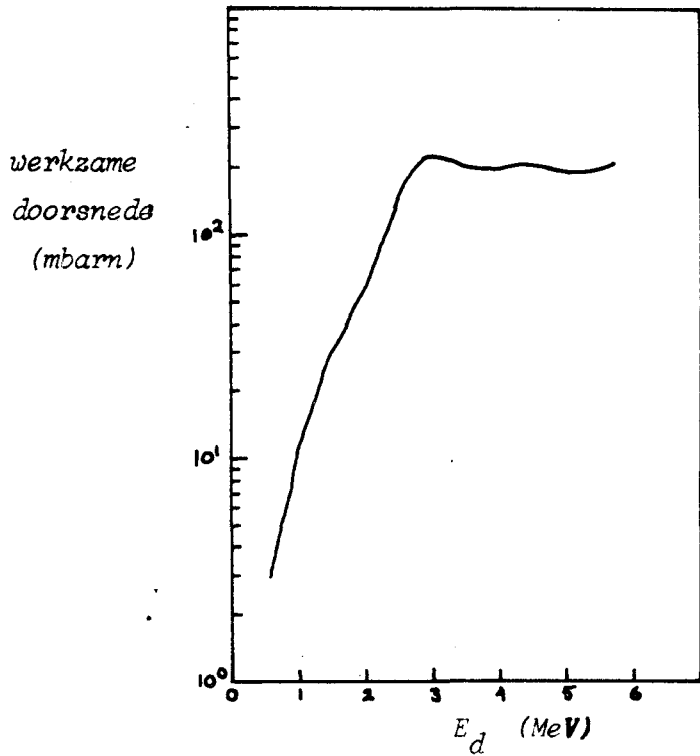
Een niet lineaire stijging van de produktieopbrengst met toenemende bundelstroom is mogelijk als volgt te verklaren;

Bij een toenemende bundelstroom zal het voor de bundel "zichtbare" gas in temperatuur stijgen. Hierdoor zal ter plekke van de bundel de gasdichtheid afnemen, en de afgelegde weglengte van de deuteronen toenemen. Wanneer de targetlengte ongeveer gelijk is gekozen aan de dracht van deuteronen met een energie van 5 MeV in  $N_2$  gas bij normale temperatuur en druk, kan het nu gebeuren dat de deuteronen niet meer volledig in het targetgas worden gestopt. Het voor de produktie van  $^{15}O$  beschikbare energieinterval wordt dan kleiner, en hierdoor zal de opbrengst dalen. In figuur 5.2-3 staat de werkzame doorsnede gegeven voor de  $^{14}N(d,n)^{15}O$  reaktie volgens Vera-Ruiz e.a. (VER77). Deze figuur toont dat ook bij lage deutronenergieën, ook onder de potentiaalbarrière, de werkzame doorsnede een niet te verwaarlozen waarde heeft. Het niet meer volledig gestopt worden van de deuteronen zal dus zeer snel tot uiting komen in een daling van de opbrengst.

In figuur 5.2-2 is af te lezen dat bij een bundelstroom van 10  $\mu A$  het produktietempo 625  $\mu Ci/s$  (23,12 MBq/s) bedraagt. Dit komt overeen met een verzadigingsaktiviteit van 111 mCi (4,1 GBq).

Kortlevende radionukliden kunnen op twee manieren aan patiënten worden toegediend t.w. continu- en bolus gewijs. Bij continue toediening door middel van inhalatie is men gebonden aan het ademhalingsdebiet van circa 10 liter (lucht)/min.

Uit het bovenstaande volgt dat met de hier beschreven produktieopstelling een aktiviteitsconcentratie bij continue toediening middels inhalatie van circa 3,7 mCi/l (0,137 MBq/m<sup>3</sup>) haalbaar is. Bij bolustoediening (eenmalige inhalatie) is een aktiviteit van ca. 111 mCi (4,1 GBq) beschikbaar. Deze waarden van de produktieopbrengst lijken hoog genoeg voor toepassing in de nucleaire geneeskunde. (zie tabel 5.2-2)



figuur 5.2-3 werkzame doorsnede voor de  $^{14}\text{N}(d,n)^{15}\text{O}$  reactie (VER77)

bron	soort van onderzoek	toegediende activiteit
NIC79	long embolie	2 mCi $^{15}\text{O}$ éénmalig
HUA81	bloedstroom meting	30 mCi $^{15}\text{O}$ éénmalig
SUB78	$\text{O}_2$ metabolisme	0,05 mCi/l $^{15}\text{O}$ continu
LAM80	$\text{O}_2$ metabolisme	21 mCi/l $^{15}\text{O}$ continu

tabel 5.2-2 in de literatuur vermelde hoeveelheden toegediende  $^{15}\text{O}$  activiteit voor een aantal medische toepassingen

### 5.3 radiochemische zuiverheid

De radiochemische zuiverheid van het bestraalde targetgas is onderzocht met de radiogaschromatograaf die is beschreven in 4.8. Bij de  $^{15}\text{O}$  produktie is de invloed nagegaan van het zuurstofgehalte in het  $\text{N}_2/\text{O}_2$  targetgasmengsel. Bij de  $\text{C}^{15}\text{O}$  produktie is de invloed van een aktieve kool absorber op een temperatuur van ca.  $400^\circ\text{C}$  in de targetgasstroom nagegaan. Van deze absorber wordt verwacht dat CO bij deze temperatuur wordt geabsorbeerd.

- radiochemische zuiverheid bij de produktie van  $^{15}\text{O}$

Onderzocht is de radiochemische zuiverheid van de volgende met 5 MeV deutronen bestraalde gasmengsels:

$\text{N}_2$	$\text{O}_2$
100%	0%
99%	1%
96%	4%
90%	10%

Op grond van de te verwachten radiochemische verontreinigingen (zie 3.3) is dit onderzoek uitgevoerd m.b.v. de chromosorb 101 kolom (zie 4.8).

Deze kolom scheidt de volgende componenten; lucht ( $\text{N}_2/\text{O}_2$ ),  $\text{NO}_2$ ,  $\text{CO}_2$  en  $\text{N}_2\text{O}$ . Al deze componenten kunnen in principe met  $^{15}\text{O}$  gemerkt zijn.

De 4 genoemde gasmengsels zijn radiochromatografisch onderzocht na bestraling met verschillende deutronbundelstromen en targetgasdebieten. de variatie van targetgasdebiet (0,2 - 3,0 l/ min) en van bundelstroom ( 0,2 - 10  $\mu\text{A}$ ) bleek geen invloed te hebben op de radiochemische zuiverheid wat betreft componenten die met de chromosorb 101 kolom van  $\text{O}_2$  gescheiden kunnen worden.

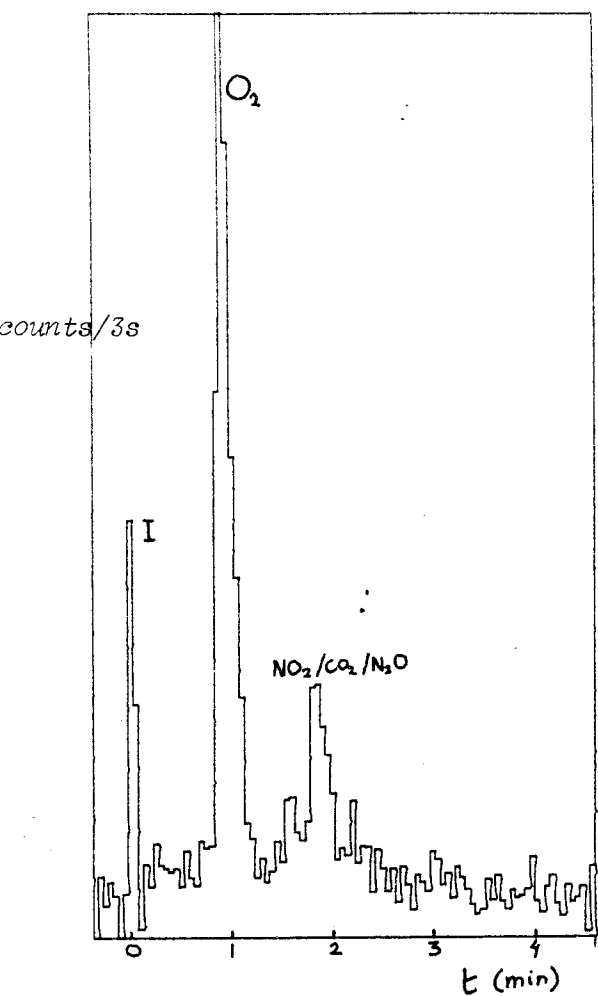
In figuur 5.3-1.a t/m d staan representatieve radiogaschromatogrammen gegeven voor de genoemde gasmengsels.

De in deze figuren zichtbare injectiepiek I is verkregen door op het tijdstip van injectie een aktief monster langs de detektor te bewegen.

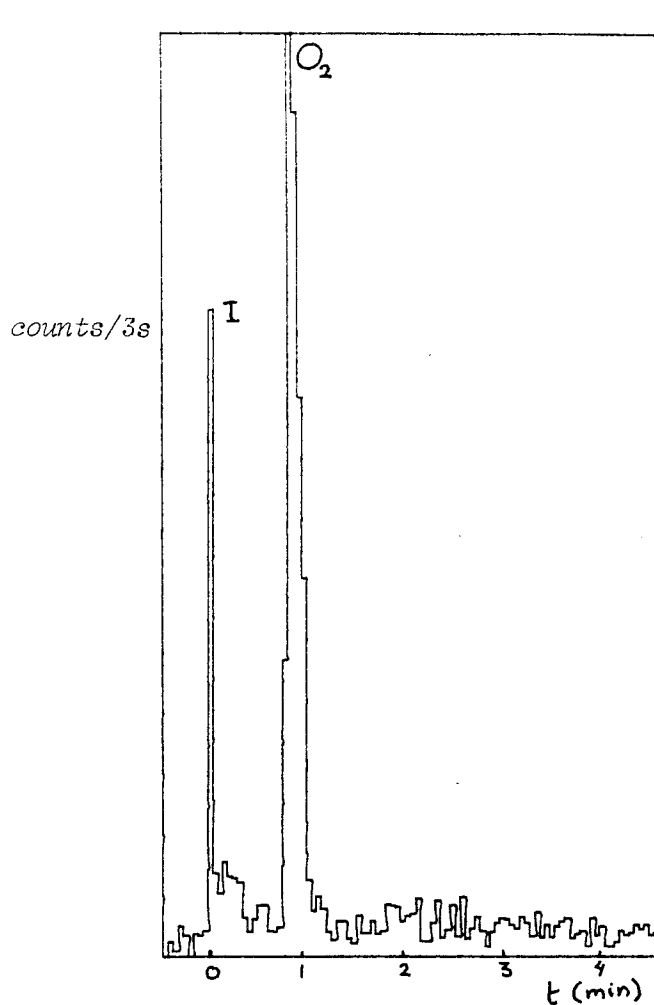


MAX= 0.49E+03

MAX= 0.63E+03



MIN= 0.37E+0



MIN= 0.32E+0

5.3-1.a 100% N<sub>2</sub>5.3-1.b 99% N<sub>2</sub>  
1% O<sub>2</sub>

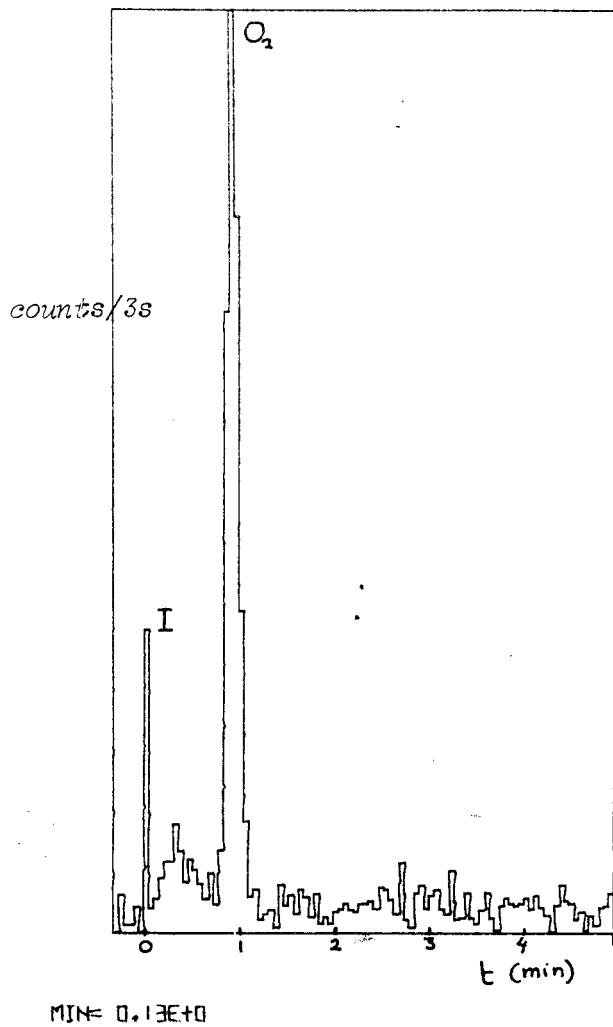
figuur 5.3-1 (a en b) representatieve radiogaschromatogrammen van  
verschillende targetgasmengsels

kolom : chromosorb-101 .  
bundelstroom : 2 mA  
gasdebiet : 275 cm<sup>3</sup>/min

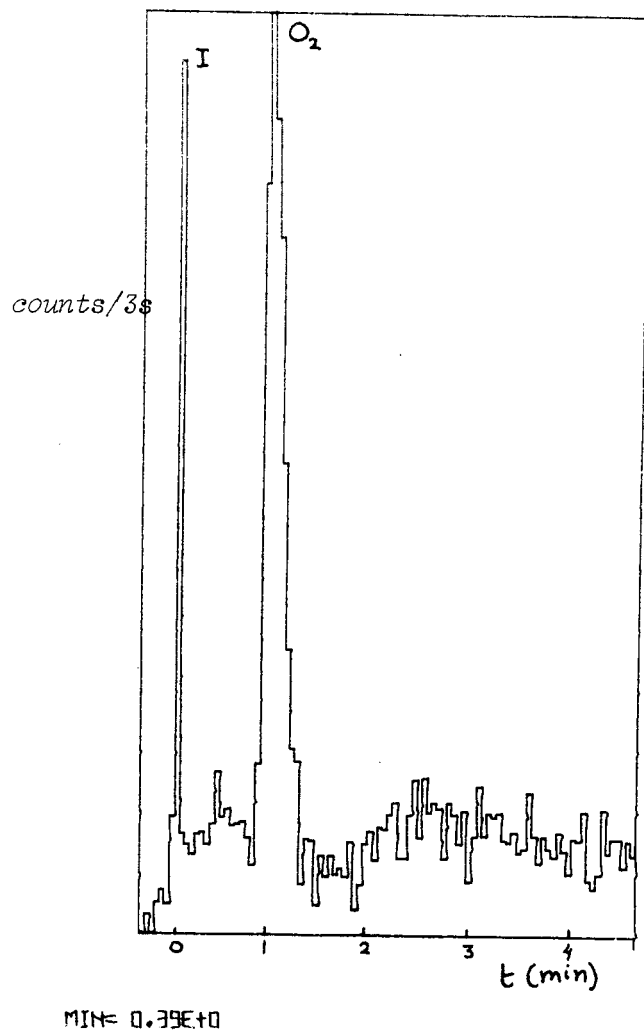
I = piek ter markering van injectietijdstip

MAX= 0.94E+03

MAX= 0.72E+03



5.3-1.c      96% N<sub>2</sub>  
                   4% O<sub>2</sub>



5.3-1.d      90% N<sub>2</sub>  
                   10% O<sub>2</sub>

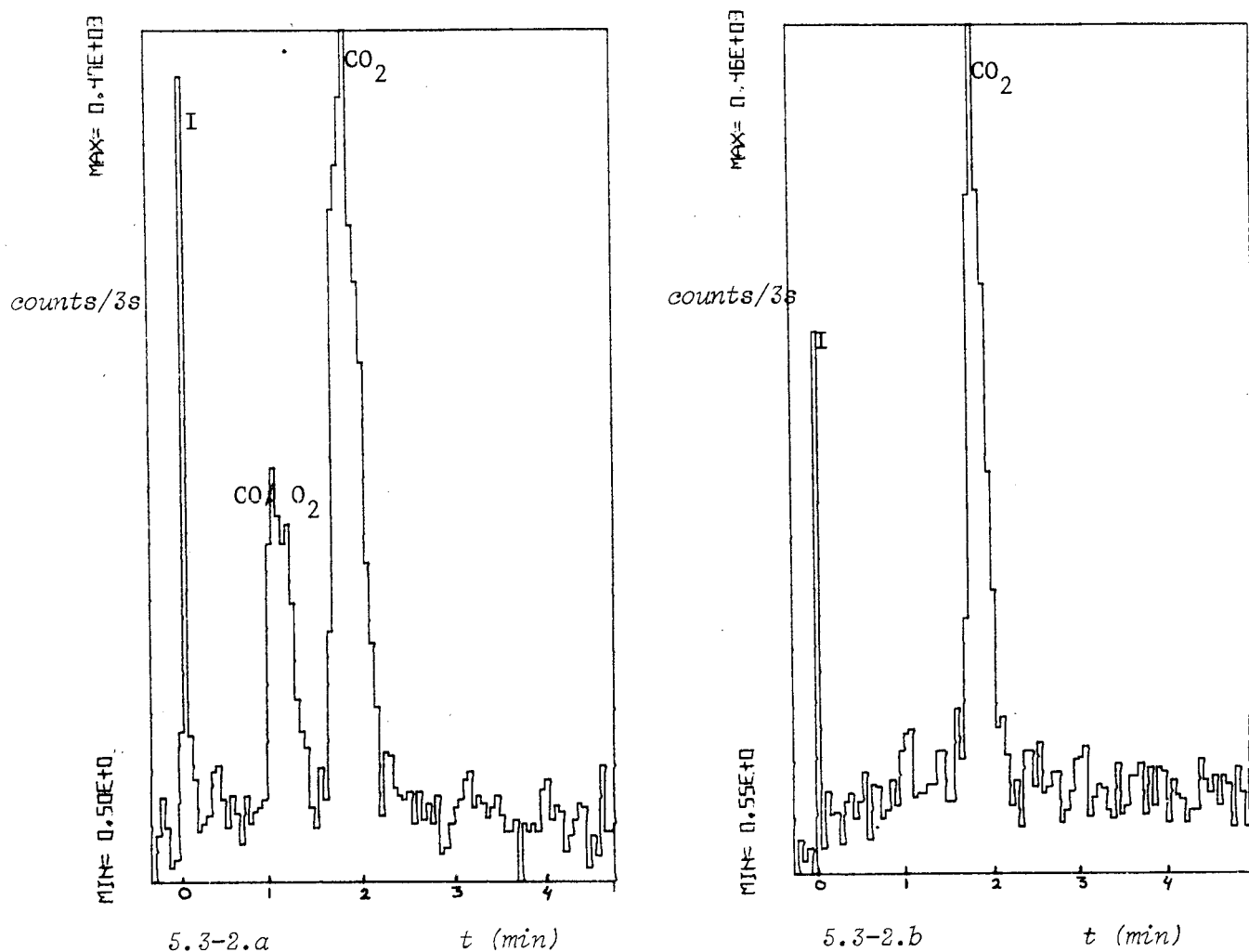
figuur 5.3-1 (c en d) representatieve radiogaschromatogrammen van verschillende targetgasmengsels

kolom : chromosorb-101  
 bundelstroom : 2.4 A  
 gasdebiet : 275 cm<sup>3</sup>/min

I = piek ter markering van injectietijdstip

- radiochemische zuiverheid bij de produktie van  $C^{15}O_0$

Voor de produktie van  $C^{15}O_0$  werd een gasmengsel bestaande uit 99%  $N_2$  en 1%  $O_2$  bestraald met 5 MeV deuteronen. Het met de chromosorb-101 kolom verkregen radiogaschromatogram staat gegeven in figuur 5.3-2.a. In figuur 5.3-2.b is een chromosorb-101 radiogaschromatogram (RGC) gegeven dat verkregen werd na het leiden van het actieve targetgas door een actieve koolabsorber op  $450^\circ C$  onder overigens dezelfde omstandigheden als bij figuur 5.3-2.a.



figuur 5.3-2 RGC van een 99%  $N_2$  - 1%  $O_2$  gasmengsel bestraald met 2  $\mu A$ , 5 MeV deuteronen

targetgasdebiet:  $275 \text{ cm}^3/\text{min}$

a geen absorber

b actieve kool absorber  $450^\circ C$

- evaluatie van de radiochemisch zuiverheid

De meetresultaten voor wat betreft de radiochemische zuiverheid zullen hieronder verder worden besproken.

- radiochemische zuiverheid van  $^{15}\text{O}$

In de figuren 5.3-1.a t/m d staan representatieve radiogaschromatogrammen gegeven, die verkregen zijn met de chromosorb-101 kolom, na bestraling van  $\text{N}_2/\text{O}_2$  gasmengsels van verschillende samenstellingen. Zoals is vermeld zijn de chromatogrammen opgenomen bij bundelstromen variërend van 0,2 tot 10 mA en targetgasdebieten tussen 0,2 en 3 liter per minuut.

Onder deze produktiekondities bedraagt de detectielimiet van de radiogaschromatografie bepalingen ongeveer 1% van de  $^{15}\text{O}$  activiteit.

Uit de metingen (zie figuur 5.1-3.b,c en d) leiden we af dat bij bestraling van  $\text{N}_2/\text{O}_2$  gasmengsels met 1%  $\text{O}_2$  of meer, geen radiochemische verontreinigingen voor meer dan 1% van de  $^{15}\text{O}$  activiteit voorkomen als bestraald wordt onder de voor deze opstelling geldende kondities.

Bij de bestraling van zuiver  $\text{N}_2$  gas onder dezelfde kondities ontstaan duidelijk aantoonbare radiochemische verontreinigingen van  $\text{N}^{15}\text{O}$ , en/of  $\text{C}^{15}\text{O}$  en/of  $\text{N}_2^{15}\text{O}$  naast het  $^{15}\text{O}$  (zie fig. 5.3-1.a)

Aangezien bij toevoeging van 1%  $\text{O}_2$  of meer, deze radiochemische verontreinigingen verdwijnen, achtten wij het niet zinvol deze verontreinigingen nader te identificeren.

- radiochemische zuiverheid van  $\text{C}^{15}\text{O}$

Bij bestraling van  $\text{N}_2$  gas met 1%  $\text{CO}_2$  onder de hierboven gegeven kondities voor de produktie van  $\text{C}^{15}\text{O}$  bevindt zich een aanzienlijke radiochemische verontreiniging in het bestraalde targetgas (ca. 20% van de  $\text{C}^{15}\text{O}$  activiteit). Overeenkomstig de relatieve retentie voor de chromosorb-101 kolom zou deze verontreiniging moeten bestaan uit  $^{15}\text{O}$  en/of  $\text{C}^{15}\text{O}$ .

Analyse van de targetgasstroom m.b.v. de Molecular Sieve 13X kolom (zie 4.8) wees uit dat de verontreiniging niet uit  $^{15}\text{O}$  bestond. Hieruit leiden we af dat de eerste piek van figuur 5.3-2.a afkomstig is van  $\text{C}^{15}\text{O}$ .

Helaas is de retentietijd van CO in de Molecular Sieve 13X kolom zo groot (ca. 16 minuten) dat een daadwerkelijk aantonen van  $\text{C}^{15}\text{O}$  niet mogelijk is. Plaatsing van een actieve kool absorber op  $450^\circ\text{C}$  in de targetafgasstroom onder overigens dezelfde condities leverde het RGC op van figuur 5.3-2.b. Deze absorber die ongeveer 50 gram actieve kool bevatte bleek effectief te zijn voor de invang van het gevormde  $\text{C}^{15}\text{O}$ . (reduktie v.d. verontreiniging tot ca. 2% van de  $\text{C}^{15}\text{O}$  activiteit).

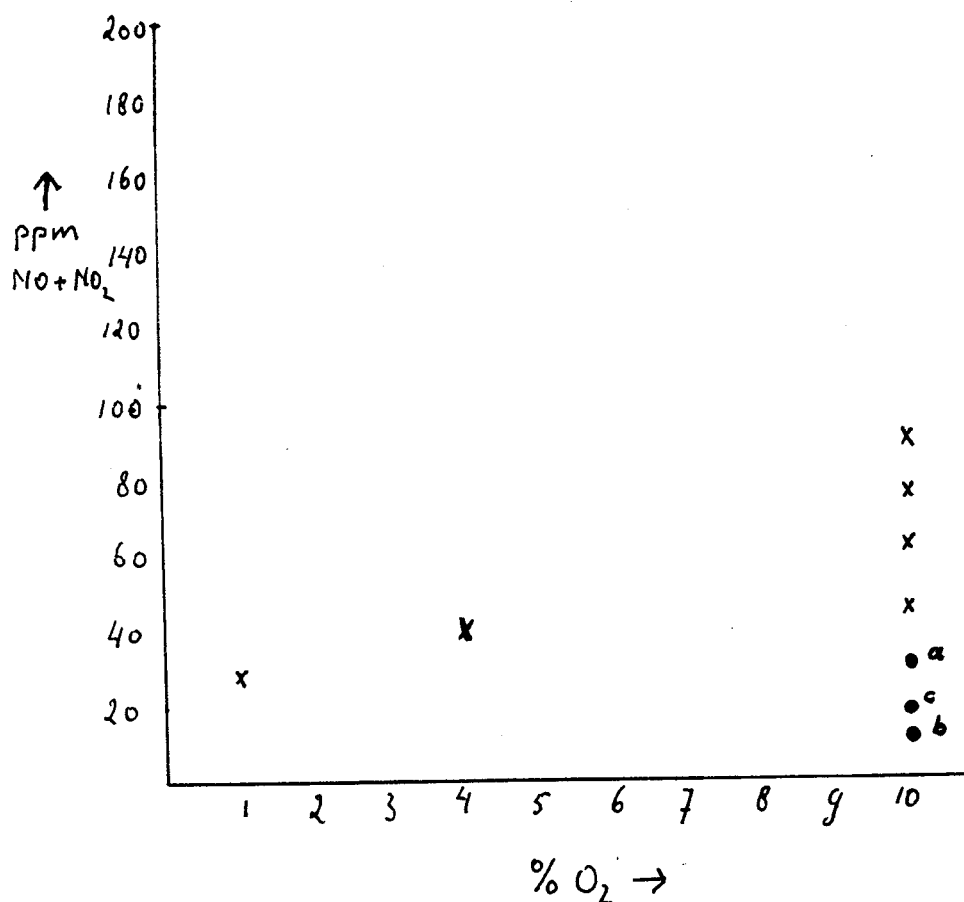
5.4 chemische zuiverheid

In 3.3 is vermeld dat bij bestraling van  $N_2/O_2$  gasmengsels, stikstof-oxiden en ozon gevormd worden. Deze verbindingen ontstaan onder invloed van de ioniserende werking van straling op  $^{14}N_2$  en  $^{16}O_2$  moleculen.

In verband met de chemische toxiciteit van het bestraalde gas is getracht de concentratie van de stikstofoxiden NO en  $NO_2$  te bepalen als functie van de  $O_2$  concentratie in de targetgasstroom, en de grootte van de bundelstroom. Tevens werd de invloed van een natronkalk absorber op de  $NO_2$  concentratie nagegaan. Natronkalk absorbeert wel  $NO_2$  maar geen NO. Gebruik makend van de Saltzman-test werden in de figuren 5.4-1 en 5.4-2. gegeven resultaten verkregen.

Hiertoe werd een gedeelte van de targetgasstroom ( $50 \text{ cm}^3/\text{min}$ ) stroomafwaarts van het gastarget, door een oplossing (het Saltzmanreagens) geleid, welke afhankelijk van de  $NO_2$  concentratie in de gasstroom verkleurt. Spectrofotometrisch werd uit deze verkleuring het  $NO_2$  en NO (na oxidatie) gehalte bepaald (zie appendix 3).

figuur 5.4-1 invloed van het aan het targetgas toegevoegde percentage  $O_2$ , en de invloed van een natronkalk absorber op de concentratie  $NO_2 + NO$



x : de concentratie van  $NO + NO_2$  als functie van het aan het targetgas toegevoegde percentage  $O_2$

a : gemeten  $NO_2$  concentratie bij het gebruik van een natronkalk absorber van 50 gram, en géén  $NO$  oxidator

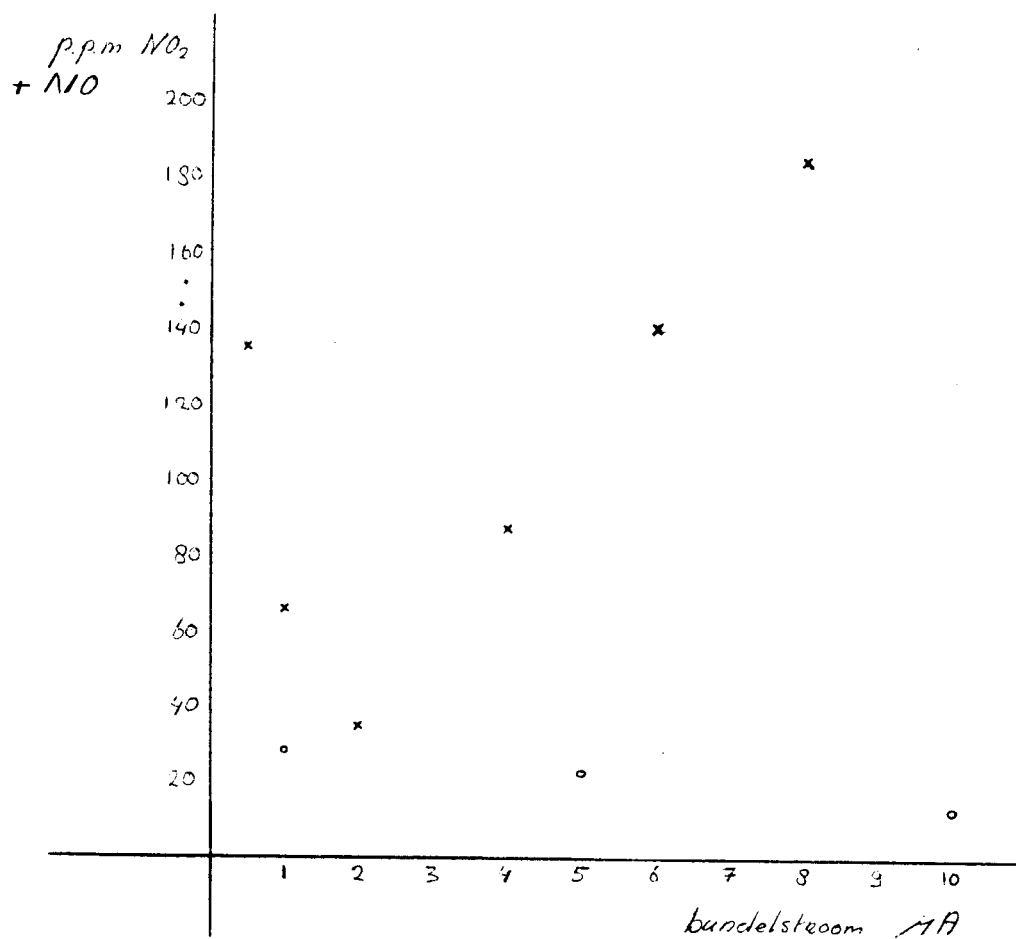
b : gemeten  $NO_2$  concentratie bij het gebruik van een natronkalk absorber van 100 gram, en géén  $NO$  oxidator

c : gemeten  $NO + NO_2$  concentratie bij het gebruik van een natronkalk absorber van 100 gram, én een achter deze absorber geplaatste  $NO$  oxidator

gebruikte bundelstroom : 2 A

targetgasdebiet : 850  $cm^3/min$

figuur 5.4-2 de concentratie  $\text{NO} + \text{NO}_2$  als functie van de gebruikte bundelstroom



o : toegevoegd percentage  $\text{O}_2$  aan targetgas 1%

x : toegevoegd percentage  $\text{O}_2$  aan targetgas 10%

targetgasdebiet:  $850 \text{ cm}^3/\text{min}$

- evaluatie van de chemische zuiverheid

In 3.3 zijn produkten genoemd van door straling geïnduceerde chemische reacties in  $N_2/O_2$  en  $N_2/CO_2$  gasmengsels. Deze reactieprodukten staan vermeld in de eerste kolom van tabel 5.4-1. In de tweede en derde kolom van deze tabel staan de MAC-waarden (maximum air concentration) en de kookpunten van de produkten gegeven. In de laatste kolom staan uit de literatuur bekende absorbers voor deze produkten vermeld.

produkt	MAC (ppm)	kookpunt ( C)	absorber
$N_2O$	-	- 88,5	aktieve kool
NO	25	-151,8	$FeSO_4$ oplossing
$NO_2$	5	+ 21,2	natronkalk
$O_3$	0,1	-111,9	natronkalk/ aktieve kool
CO	50	-191,5	$I_2O_5$
$CO_2$	5000	- 78,5	natronkalk

tabel 5.4-1 produkten van stralingsgeïnduceerde reacties op  
 $N_2/O_2$  en  $N_2/CO_2$  gasmengsels

$N_2O$  is een anestheticum; het komt voor 0,5 ppm voor in lucht

Tijdens dit onderzoek hebben we ons beperkt tot het bepalen van de som van de NO en  $NO_2$  concentraties in het bestraalde targetgas m.b.v. de Saltzman-test methode. Het leek ons niet zinvol, hoewel dit met de Saltzman-test wel mogelijk is, steeds de NO en  $NO_2$  concentratie afzonderlijk te bepalen. Omdat het evenwicht  $NO + \frac{1}{2} O_2 \rightarrow NO_2$  geheel naar rechts ligt bij kamertemperatuur, zal de in het targetgas aanwezige



NO concentratie gering zijn t.o.v. de NO<sub>2</sub> concentratie.

Meting van het ozongehalte in een hoeveelheid bestraald targetgas m.b.v. een ozonmonitor, leverde geen detekteerbare hoeveelheid ozon op. Dit is niet verwonderlijk omdat de vorming van stikstofoxiden o.i.v. straling steeds via de vorming van NO verloopt (zie 3.3) en de reactie



zeer snel verloopt.

We beschikken niet over een methode voor de bepaling van N<sub>2</sub>O in het targetgas. Volgens Dmitriev e.a. (DMI60) is de vormingssnelheid van N<sub>2</sub>O bij de door straling geïnduceerde oxidatie van N<sub>2</sub> steeds klein t.o.v die van NO

De met de Saltzman-test verkregen meetresultaten die zijn gegeven in figuur 5.4-1 vertonen een grote spreiding. Daarom is het te voorbarig meer conclusies aan deze metingen te onttrekken dan het onderstaande tweetal:

- 1) Het lijkt erop dat de NO<sub>x</sub> vorming toeneemt met een stijgende O<sub>2</sub> concentratie in het targetgas, in het gebied tussen 0 en 10%.
- 2) Een natronkalkabsorber, mits groot genoeg, reduceert het NO<sub>2</sub> gehalte in het bestraalde targetgas aanzienlijk. (zie fig. 5.4-1 punt a, b en c)

In figuur 5.4-2 zijn de resultaten gegeven verkregen met de Saltzman-test na het bestralen van een tweetal N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> mengsels (1% resp 10% toegevoegd O<sub>2</sub>) met verschillende bundelstromen.

De daling van de NO + NO<sub>2</sub> concentratie bij toenemende bundelstroom bij het 1% O<sub>2</sub> mengsel en bij het 10% O<sub>2</sub> mengsel beneden 2 mA, kunnen we op dit moment niet verklaren.

De stijging van de aanmaak van NO en NO<sub>2</sub> bij toenemende bundelstroom vanaf 2 mA in het 10% O<sub>2</sub> mengsel is in overeenstemming met metingen van Dmitriev e.a. (DMI60).

De G-waarde (aantal gevormde moleculen/100 eV) voor de aanmaak van  $\text{NO} + \text{NO}_2$  is voor de bundelstromen van 4, 6 en 8  $\mu\text{A}$  konstant en gelijk aan 2 molekulen/100 eV, hetgeen in overeenstemming is met de door Dmitriev e.a. gevonden waarden (DMI60).

## CONCLUSIES

Uit de in dit verslag beschreven resultaten kunnen de volgende conclusies worden getrokken:

- 1) De ontwikkelde procedure voor de produktie van met  $^{15}\text{O}$  gemerkt  $\text{O}_2$  en  $\text{CO}_2$  via de  $^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$  reaktie met 5 MeV deutronen (compact-cyclotron voorwaarden) biedt goede perspectieven voor toepassing in de nucleaire geneeskunde.

Ten aanzien van de produktieopbrengst, de radionuklidische zuiverheid, de radiochemische zuiverheid en de chemische verontreinigingen kan hetvolgende worden opgemerkt:

- De continue produktieopbrengst van 23MBq/s (625  $\mu\text{Ci/s}$ ) en de verzadigingsopbrengst van 4,1 GBq (111 mCi) bij een 5 MeV deutronenbundelstroom van 10  $\mu\text{A}$  ligt in dezelfde orde als de in de literatuur genoemde waarden voor toediening van  $^{15}\text{O}$  en  $\text{C}^{15}\text{O}$  via inhalatie, zowel continu als éénmalig (zie pag.48).
- $^{41}\text{Ar}$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 1,83 \text{ h}$ ) is de enige radionuklidische verontreiniging die in de bestraalde gassen werd aangetoond (ca.  $10^{-6}$  maal de  $^{15}\text{O}$  aktiviteit). Door het gebruik van zeer zuivere, edelgasvrije,  $\text{N}_2/\text{O}_2$  en  $\text{N}_2/\text{CO}_2$  mengsels, is deze verontreiniging te elimineren (zie pag.44).

Vervolgens is aangetoond dat  $^{13}\text{N}$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 10 \text{ m}$ ) bij de produktie van  $\text{C}^{15}\text{O}$  bij bestraling van  $\text{N}_2/\text{CO}_2$  gasmengsels (99% / 1%) voor minder dan de detektielimit (0,2% van de  $^{15}\text{O}$  aktiviteit) wordt aangemaakt. Verontreinigingen met  $^{17}\text{F}$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 66 \text{ s}$ ) en  $^{18}\text{F}$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 110 \text{ m}$ ) zijn niet aangetoond. Indien zij in aanzienlijke hoeveelheden worden aangemaakt, zijn zij eenvoudig te verwijderen vanwege hun hoge chemische reaktiviteit (zie pag.43).

Een eventuele verontreiniging met  $^{16}\text{N}$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 7,1 \text{ s}$ ) kon met de bestaande apparatuur niet worden vastgesteld. Fysisch verval in transportleidingen en absorbers zal deze verontreiniging echter grotendeels doen verdwijnen (zie pag.43).

- Bij de produktie van  $^{15}\text{O}$  kunnen mogelijke radiochemische verontreinigingen met  $\text{N}_2^{15}\text{O}$ ,  $\text{N}^{15}\text{O}$  en  $\text{C}^{15}\text{O}$  beperkt worden tot minder van 1% van de  $^{15}\text{O}$  aktiviteit door toevoeging van 1% of meer  $^{16}\text{O}_2$  (zie pag.54).

Bij de produktie van  $\text{C}^{15}\text{O}$  kunnen mogelijke radiochemische verontreinigingen tot minder dan 2% van de  $\text{C}^{15}\text{O}$  aktiviteit door toevoeging van 1% of meer drager  $\text{C}^{16}\text{O}_2$ , en door het gebruik van een aktieve kool absorber op 450 C (zie pag.54).

- Aangetoond is dat zonder toepassen van absorbers, bij bestraling van  $\text{N}_2/\text{O}_2$  gasmengsels (99% / 1%) de  $\text{NO}_2 + \text{NO}$  concentratie in het onverdunde bestraalde gas kleiner is dan 100 ppm bij bundelstromen variërend tussen 0 en 10  $\mu\text{A}$  en bij een targetgasdebiet van 850  $\text{cm}^3/\text{min}$ .

Door verdunning van het bestraalde gas (voor het bereiken van het ademhalingsdebiet), en door het gebruik van een natronkalk absorber, is deze concentratie sterk te verlagen. Een chemische verontreiniging met  $\text{O}_3$  is niet gebleken (pag.57/59).

- Uit het hierboven beschrevene volgt dat er geen aspecten verbonden aan het produktieproces zijn, die een toepassing in de nucleaire geneeskunde a priori belemmeren. Alvorens tot een zodanig gebruik te besluiten is een nader onderzoek van de chemische en radionuklidische verontreinigingen (met name  $^{16}\text{N}$ ) gewenst.

- 2) De gebouwde bestralingsopstelling en de ontwikkelde apparatuur voor de bepaling van opbrengst, radionuklidische-, radiochemische-, en chemische zuiverheid zijn geschikt voor de produktie van met  $^{15}\text{O}$  gemerkt  $\text{O}_2$  en  $\text{CO}_2$ .

APPENDIX I coïncidente meettechniek

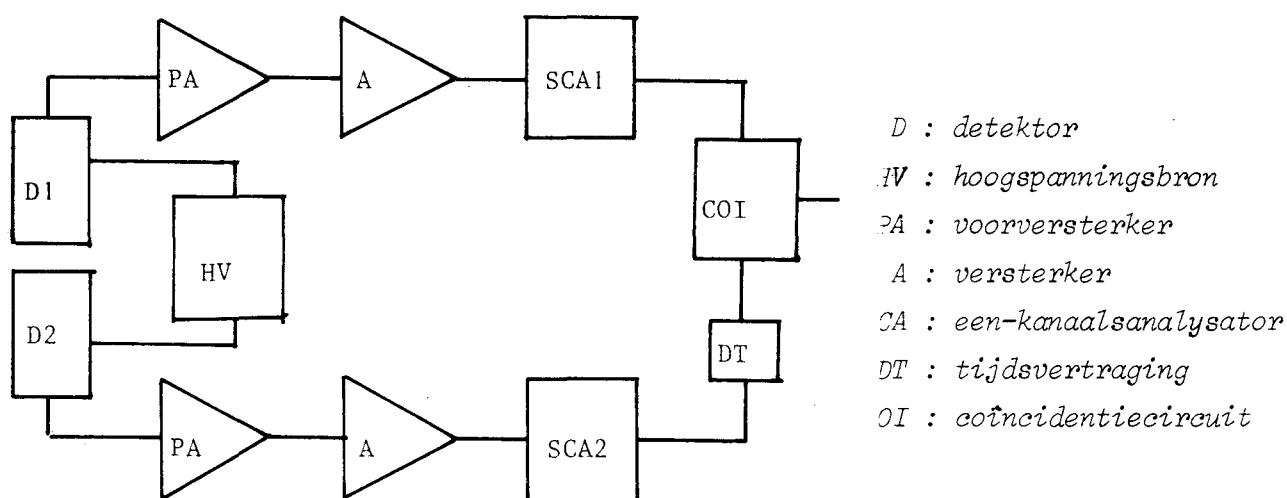
Het aantonen dat twee kernfysische gebeurtenissen gelijktijdig plaatsvinden kan mogelijk gemaakt worden m.b.v. een coïncidentiecircuit.

Een coïncidentiecircuit werkt op gestandaardiseerde logische pulsen, en bepaalt of deze pulsen vallen binnen een bepaald tijdsinterval, de resolutietijd  $2\tau$ .

Een coïncidentiecircuit bezit twee ingangen; alleen wanneer op beide een puls wordt aangeboden, binnen een maximaal tijdsinterval  $2\tau$ , wordt aan de uitgang van het circuit een puls gegenereerd.

De standaard logische uitgangspuls van een een-kanaalsanalysator kan als ingangssignaal worden gebruikt. Op beide ingangen van het coïncidentiecircuit is een een-kanaalsanalysator aangesloten.

In figuur A.1.1 is de algemene vorm van een coïncidentie meetopstelling gegeven.



figuur A.1.1 algemene schematische voorstelling van een coïncidentie meetopstelling

Beschouw nu de situatie waarin een gamma-bron die per desintegratie slechts één gamma-quant uitzendt, geplaatst is tussen de detectoren  $D_1$  en  $D_2$  ( zie figuur A.1.1 ), en waarvoor hetvolgende geldt:

- $N_0$  = bronsterkte van de gamma-bron die per desintegratie slechts één gamma uitzendt
- $E_1$  = meetrendement van de eerste detector voor de uitgezonden gamma-lijn
- $E_2$  = meetrendement van de tweede detector voor de uitgezonden gamma-lijn
- $\tau$  = coïncidentie oplostijd van het meetsysteem

Wanneer op tijdstip  $t$  een puls uit de eerste detector  $D_1$  in het coïncidentie-circuit aankomt, wordt een puls uit detector  $D_2$  welke tussen  $t$  en  $t+\tau$  aankomt, hiermee als coïncident beschouwd. Ook wanneer een puls tussen  $t$  en  $t-\tau$  uit detector  $D_2$  arriveert in het coïncidentie circuit, wordt deze als coïncident gedetekteerd met de puls uit  $D_1$ .

De telsnelheid in detector  $D_1$  is in ons geval gelijk aan  $N_0 E_1$ , en de telsnelheid in detector  $D_2$  is gelijk aan  $N_0 E_2$ . Het coïncidentie-circuit staat dus  $2\tau N_0 E_1$  seconden per seconde open, en het teltempo van toevallige coïncidenties  $N_t$  is gelijk aan  $2\tau N_0 E_1 N_0 E_2$ .

Er geldt nu:

$$N_1 = N_0 E_1$$

$$N_2 = N_0 E_2$$

$$N_t = 2\tau N_0 E_1 N_0 E_2$$

waaruit volgt  $2\tau = N_t / N_1 N_2$

De resolutietijd van het , in de  $^{150}$  meetopstelling gebruikte coïncidentie-circuit, is op deze wijze bepaald m.b.v. een aantal in bronsterkte verschillende  $^{137}\text{Cs}$  bronnen. De gemiddelde waarde van deze resolutietijd bedroeg 1,7 s.

Ook in het geval van een positronemitter, waarbij twee coïncidente 511 keV annihilatie quanta per desintegratie worden uitgezonden, zal het gemeten coïncidente teltempo samengesteld zijn uit ware en toevallige coïncidenties. De verhouding van de ware ( $N_w$ ) en de toevallige ( $N_t$ ) coïncidenties kan als volgt worden bepaald:

gegeven:  $N_0$  = bronsterkte in des/s van de positron emitter

$E_b$  = bronrendement

$E_{d1}$  = detektorrendement detektor  $D_1$

$E_{d2}$  = detektorrendement detektor  $D_2$

$E_{g1}$  = geometrisch rendement detektor  $D_1$

$E_{g2}$  = geometrisch rendement detektor  $D_2$

$E_{r1}$  = registratie rendement van de aan  $D_1$  geschakelde apparatuur

$E_{r2}$  = registratie rendement van de aan  $D_2$  geschakelde apparatuur

Voor het aantal toevallige coïncidenties geldt nu

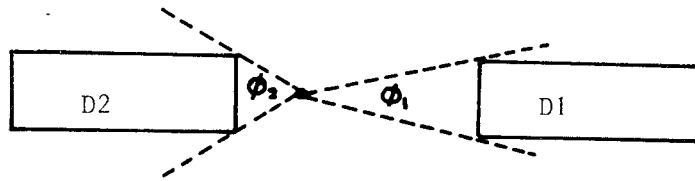
$$N_t = 2 \tau N_0^2 E_b^2 E_{d1} E_{d2} E_{g1} E_{g2} E_{r1} E_{r2}$$

We nemen nu aan dat  $E_{g1}$  kleiner is dan  $E_{g2}$ .

De kans dat bij de uitzending van 2 coïncidente annihilatie quanta een van beide wordt gedetekteerd in  $D_1$  is gelijk aan  $E_b E_{d1} E_{r1} E_{g1}$ .

De kans dat het andere quant geteld wordt in  $D_2$  is dan gelijk aan  $E_b E_{d2} E_{r2}$ . De term  $E_{g2}$  valt hier weg omdat gegeven is dat  $E_{g1} < E_{g2}$ , en beide annihilatie quanta worden uitgezonden onder een hoek van  $180^\circ$ , en de detectoren onder een hoek van  $180^\circ$  staan opgesteld.

Wanneer een quant wordt uitgezonden binnen het gezichtsveld van de detector met de kleinste ruimtehoek, dan ligt het tweede annihilatie quant automatisch binnen het gezichtsveld van de tweede detector. (Zie fig. A.1-2)



figuur A.1-2 in het geval dat gamma-annihilatie-1 wordt uitgezonden  
 : binnen  $\phi_1$ , dan ligt gamma-annihilatie-2 vanzelf  
 : binnen  $\phi_2$

Voor het aantal ware coïncidenties per seconde kunnen we dan schrijven:

$$N_w = N_0 E_b^2 E_{d1} E_{d2} E_{r1} E_{r2} E_g$$

Uit de gegeven formules voor  $N_w$  en  $N_t$  volgt dan:

$$\frac{N_w}{N_t} = \frac{1}{2\tau N_0 E_g^2}$$



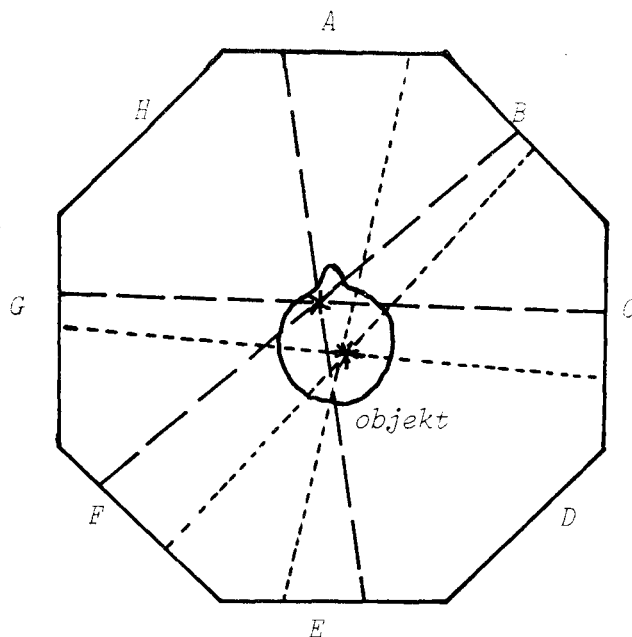
APPENDIX II positronemissie tomografie

Bij de toepassing van een radioactief analogon van lichaamseigen stoffen zal bijna altijd  $^{11}\text{C}(T_{\frac{1}{2}} = 20\text{m})$ ,  $^{13}\text{N}(T_{\frac{1}{2}} = 10\text{m})$  of  $^{15}\text{O}(T_{\frac{1}{2}} = 2\text{m})$  als radioactief label moeten worden gebruikt. Deze radionucliden zijn alle drie positronemitters. Bij in vivo toepassingen zal de detectie van deze radionucliden moeten geschieden m.b.v. de 511 keV annihilatie straling. De hoge energie van deze straling maakt deze ongeschikt voor detectie met een conventionele gamma-scintillatie camera, tenzij zeer grote collimatoren worden gebruikt.

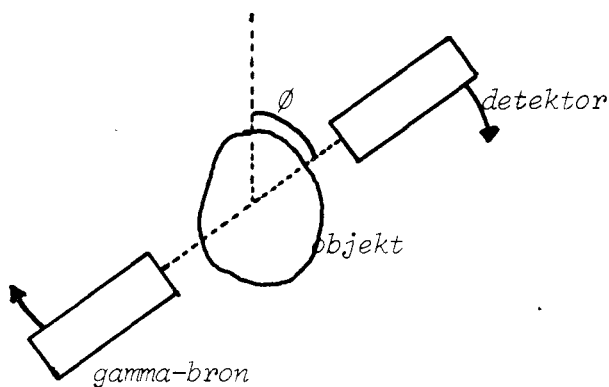
Een manier om de distributie van met positronemitters gelabelde radiofarmaca bij in vivo studies af te beelden wordt geboden door het feit dat de annihilatie quanta bijna altijd onder een hoek van 180° ten opzichte van elkaar worden uitgezonden. Bij gebruik van meerdere coïncident geschakelde detectoren, kan een tomografisch systeem worden verkregen, zonder dat het gebruik van een loodcollimator nodig is. Bij zo een PET-camera zijn de detectoren veelal in een ringvorm gerangschikt. Het te beschouwen object wordt in het midden van de detectorenring geplaatst. De uitgezonden 511 keV gamma-annihilatie quanta worden in de detectoren opgevangen. Met behulp van een data-verwerkende computer kan de plaats van annihilatie worden bepaald. (fig. A.2-1). Hierdoor is het mogelijk de aktiviteitsverdeling in het object nauwkeurig vast te stellen. Het ruimtelijk scheidend vermogen van deze meetmethode wordt voornamelijk beperkt door de dracht van de positronen in het object.

Omdat de twee bij annihilatie vrijkomende gamma-quanta saren een constante afstand afleggen in het object, ongeacht de plaats op de lijn waar de annihilatie heeft plaatsgevonden, is het mogelijk om voor de verzwakking in het object te corrigeren, wanneer de verzwakkingscoëfficiënt als functie van de hoek  $\theta$  ( zie figuur A.2-2) bekend is.

Bepaling van deze functie kan geschieden door een uwendige gamma-bron met bekende intensiteit om het object te bewegen, en de stralingsintensiteit aan de andere zijde van het object te meten ( figuur A.2-2)



figuur A.2-1 schematische voorstelling van de detektorenring van een PET camera. De detektoren in de vlakken A,B,C,D zijn coïncident geschakeld met de detektoren in de respectievelijke vlakken E,F,G en H. Op de snijpunten der lijnen hebben zich een aantal coïncidenties voorgedaan.



figuur A.2-2 mogelijkheid voor de bepaling van de verzwakkingscoëfficiënten als functie van de hoek  $\phi$  m.b.v. een ten opzichte van elkaar vaststaande bron en detektor.

Het grote voordeel van PET boven de conventionele gamma-scintigrafie is dat PET een beeld geeft van de ruimtelijke verdeling van de radio-actief gelabelde stoffen in het objekt.

Bij de conventionele technieken geeft het gebruik van een collimator aanleiding tot een verschil in ruimtelijke resolutie, afhankelijk van diepte in het objekt waar de gamma is uitgezonden. Ook is het bij deze methode niet mogelijk onderscheid te maken tussen het gebied van interesse en de actieve zones vóór en achter dit gebied. Hierdoor is het praktisch ondoenlijk een goede correctie voor de verzwakking in het objekt toe te passen. Deze technieken geven slechts een twee-dimensionaal beeld van een vaak complexe driedimensionale verdeling.

Omdat bij PET de ruimtelijke resolutie onafhankelijk is van de diepte, en er een goede correctie voor de verzwakking mogelijk is, en de detektorenring langs zijn hartlijn te bewegen is, is deze methode in staat een driedimensionaal beeld van de aktiviteitsverdeling en aktiviteitsverloop te geven (TER80) (JON80) (LAM81) (PAA81)

APPENDIX III colorimetrische bepaling van NO<sub>2</sub> in gassen  
met behulp van de Saltzman test

De Saltzman methode voor de bepaling van concentraties NO<sub>2</sub> in gassen in het ppm gebied, berust op het verkleuren van de Saltzmanreagens oplossing wanneer deze in aanraking komt met NO<sub>2</sub>.

Saltzman reagens bestaat uit de volgende componenten:

- 1) 5 gram sulfanielzuur opgelost in 800 ml gedestilleerd water en 140 ml ijsazijn
- 2) 20 ml van een 0,1% oplossing van N-(1-naphtyl)-ethyleendiamine dihydrochloride
- 3) een aanvulling van de aldus verkregen oplossing tot 1 liter met gedestilleerd water

Onder invloed van reeds kleine hoeveelheden NO<sub>2</sub> wordt de oplossing rose/rood van kleur door de vorming van diazosulfanielzuur.

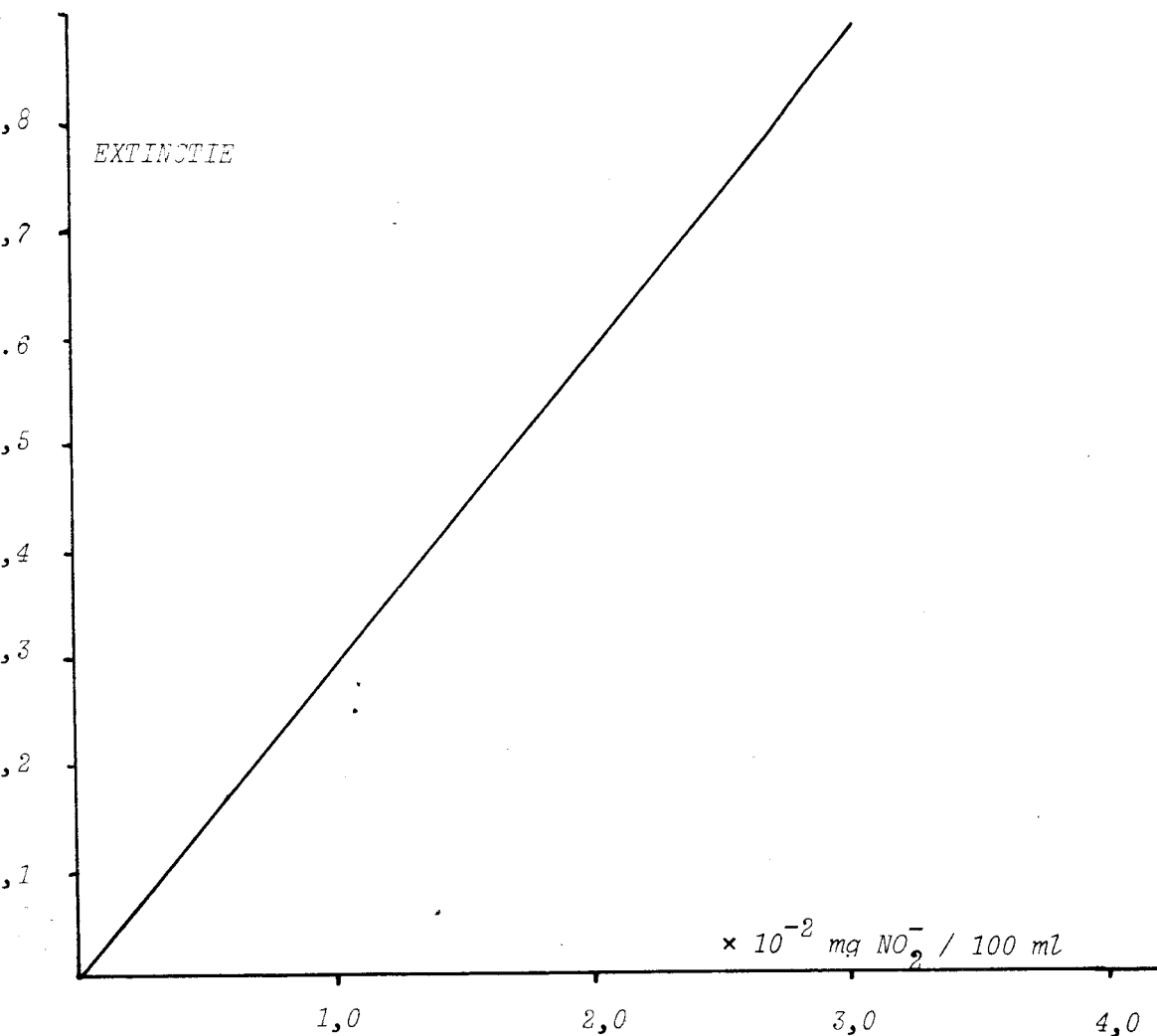
De intensiteit van de verkleuring wordt bepaald met een spectrofotometer, waarbij de extinctie wordt gemeten. De extinctie is gelijk aan de  $-^{10}\log$  van de transmissie en is evenredig met de concentratie NO<sub>2</sub> in het reagens. Bij de bepaling van de concentratie NO<sub>2</sub> wordt gebruik gemaakt van een ijkgrafiek, waarbij de extinctie van licht met een golflengte van 520 nm staat uitgezet tegen de NO<sub>2</sub><sup>-</sup> concentratie van een aantal nitriet oplossingen van 100 ml. De lengte van de ijkcuvetten waarmee de ijkgrafiek is bepaald bedroeg 4 cm. De lengte van de meetcuvetten waarmee de Saltzmanreagens oplossingen werden gemeten bedroeg 1 cm.

Alvorens het te analyseren gas door het Saltzmanreagens te leiden wordt het door een oxyderende oplossing geleid waarin NO wordt omgezet tot NO<sub>2</sub>.

Het debiet van het door het reagens geleide gas bedroeg steeds 50 ml/min.

In figuur A.3-1 is de gebruikte ijkcurve voor de NO<sub>2</sub><sup>-</sup> concentratie gegeven.

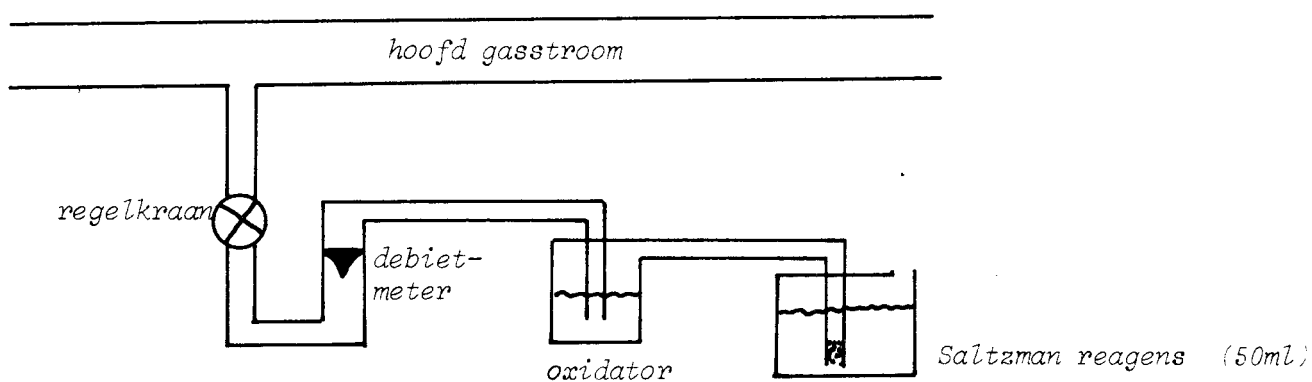
De gebruikte opstelling voor de Saltzman test staat gegeven in figuur A.3-2.



figuur A.3-1 ijkgrafiek voor  $\text{NO}_2$  concentratie bepaling

4cm cuvetten

golflengte licht : 520 nm



figuur A.3-2 opstelling voor de  $\text{NO}_2$  concentratie bepaling m.b.v. een Saltzmanreagens oplossing

De bepaling van de  $\text{NO}_2$  concentratie in het gas gaat als volgt:

gegeven:	volume Saltzmanreagens oplossing	: 50 cm <sup>3</sup>
	gebruikt gasdebiet door reagens	: F cm <sup>3</sup> /min
	doorvoertijd	: T min
	lengte meetcuvetten	: 1 cm
	volume Saltzman ijkmonster	: 100 cm <sup>3</sup>
	lengte ijkcuvetten	: 4 cm
	molgewicht $\text{NO}_2$	: 46 g/mol
gemeten:	extinctie	: $\epsilon$
	afgelezen concentratie op ijkgrafiek	: R mg/100 cm <sup>3</sup>

Voor het gemeten monster geldt nu:

$$\text{hoeveelheid geadsorbeerd } \text{NO}_2 = C = \frac{4}{1} \times R \times \frac{50}{100} \text{ mg}$$

$$\text{hoeveelheid doorgevoerd gas} = F \times T \text{ ml}$$

$$\text{in het gas was dus aanwezig: } \frac{C}{F \times T} \text{ mg } \text{NO}_2/\text{ml}$$

$$= \frac{C \times 22,4 \cdot 10^3}{F \times T \times 46} \text{ mmol } \text{NO}_2/\text{mol}$$

$$= \frac{C \times 22,4}{F \times T \times 46} \text{ ppm } \text{NO}_2$$

## REFERENTIES

- CLA75            Clark J.C. , Buckingham P.D.  
Short Lived Radioactive Gases for Clinical Use  
Butterworths London and Boston 1975
- CLE82            Cleven W.  
stageverslag produktie  $^{18}\text{F}$   
onderwerpgroep cyclotrontoepassingen THE  
te publiceren
- DEN72            Denaro A.R. , Jayson G.C.  
Fundamentals of Radiation Chemistry  
Butterworths London 1972
- DMI60            Dmitriev M.T. , Pshezhetskii S.Ya.  
Russian Journal of Phys. Chem. vol.34 4 (1960) 418
- DMI61            Dmitriev M.T. , Pshezhetskii S.Ya.  
Russian Journal of Phys. Chem. vol.35 5 (1961) 495
- DMI66            Dmitriev M.T.  
Russian Journal of Phys. Chem. vol.40 8 (1966) 819
- FI979            Del Fiore G. , Depresseux J.C. , Bartsch P. ,  
Quaglia L. , Peters J.M.  
IJARI 30 (1979) 543
- FRA80            Frackowiak R.S.J. , Lenzi G.L. , Jones T. ,  
Heather J.D.  
Journal of Comput. Assist. Tomogr. 4 (1980) 727
- HAR56            Harteck P. , Dondes S.  
Journal of Chem. Phys. 24 (1956)

- HUA81            Huarg S.C. , Phelps M.E. , Carson R.E. ,  
                   Hoffman E.J. , Plummer D. , MacDonnald N. ,  
                   Kuhl D.E.  
                   Journal of Nucl. Med. 22 (1981) p16
- JON77            Jones S.C. , Bucetewicz W.M. , Brisette R.A.  
                   IJARI 28 (1977) 25
- KEN75            Kenny P.J. , Watson D.D. , Janowiz W.R. ,  
                   Finn R.D. , Gilson A.J.  
                   Journal of Nucl. Med. 17 (1975) 965
- LAM81            Lammertsma A.A.  
                   Positron Emissie Tomografie in Fysiologische Studies  
                   Nederlandse Vereniging voor Klinische Fysica  
                   Nascholingssymposium 1981
- LAN73            Landolt - Börnstein  
                   New Series I/5b  
                   Springer Verlag Berlin 1973
- MAR67            Marion J.B. , Zimmerman B.A.  
                   Nucl. Inst, Meth. 51 (1967) 93
- MAR68            Marion J.B. , Young F.C.  
                   Nucl. Reactor Anal. North Holland Publishing  
                   Company 1968
- NIC79            Nichols A.B. , Cochavi S. , Hales C.A. ,  
                   Beller G.A. , Strauss H.W.  
                   Journal of Nucl. Med. 20 (1979) 281
- OSE77            Oselka M. , Gindler J. , Friedman A.  
                   IJARI 28 (1979) 804
- PAA81            Paans A.M.J.  
                   Positron Emissie Tomografie  
                   Nedrelandse Vereniging voor Klinische Fysica  
                   Nascholingssymposium 1981



- RET60            Retz-Schmidt T. , Weil J.L.  
Phys. Rev. vol.119 3 (1960) 1079
- SAL54            Saltzman B.E.  
Anal. Chem. vol 26 12 (1954) 1949
- SER75            Servian J.L.  
IJARI 26 (1975) 763
- SUB78            Subramaniam R. , Alpert N.M. , Hoop B. ,  
Brownell G.L. , Taveras J.M.  
Journal of Nucl. Med. 19 (1978) 48
- SUZ77            Suzuki K. , Iwata R.  
Radiochem. Radioanal. Letters 28 (1977) 263
- TER80            Ter Pogossian M.M. , Raichle M.E. , Sobel B.E.  
Scientific American October 1980 243
- VER77            Vera Ruiz H. , Wolf A.P.  
Radiochimica Acta 24 (1977) 65
- WIL66            Williamson C. , Boujot J. , Picard J.  
Tables of Range and Stopping Power of Chemical Elements  
for Charged Particles of Energy 0.05 to 500 MeV  
Rapport CEA-R 3042 (1966)

## NAWOORD

Tijdens mijn afstudeerwerk heb ik veel steun en hulp gehad van een groot aantal mensen.

In de eerste plaats wil ik Ton Janssen hartelijk bedanken voor de goede begeleiding en vele steun die ik van hem heb gekregen. De fijninstrumentmakers van de afdeling der Technische Natuurkunde hebben steeds klaar gestaan wanneer een onderdeel van de opstelling, vaak met grote haast, moest worden gemaakt.

Mej. M.A. van Straten en ir. H. Zeedijk hebben veel hulp geboden en goede raad gegeven bij de bepalingen ten aanzien van de chemische zuiverheid van de bestraalde gassen. C. van Tilburg heeft mij wegwijs gemaakt op het gebied van de gaschromatografie, en adviezen gegeven bij de bouw van de gebruikte radiogaschromatograaf.

De bedrijfsgroep van het cyclotron heeft er steeds voor gezorgd dat de deuteronenbundel met de juiste energie op de goede plaats terecht kwam. Zonder deze mensen was het in dit verslag beschreven onderzoek niet mogelijk geweest.

Prof. dr. ir. J.J.M. de Goeij en mijn afstudeerhoogleraar prof.dr.ir. H.L. Hagedoorn wil ik tesamen met ir. A.G.M. Janssen bedanken voor de goede raad die zij mij gegeven hebben tijdens het schrijven van dit verslag. Niet in de laatste plaats wil ik de jongens van Musschenbroekstraat 51 (Han, Henri, Herman, Rob en Peter) danken voor het feit dat zij, in de periode dat ik bezig was dit verslag te schrijven en uit te werken, niet op mijn kamer naar de televisie hebben gekeken. Ook waren zij zo goed mij in deze periode van een aantal kookbeurten te verlossen. Verder wil ik alle mensen met wie ik in mijn afstudeerperiode heb samengewerkt, en heb mogen ontmoeten, bedanken voor de prettige wijze waarop dit gegaan is.

Kees Castelijns