

RC-10



---

---

---

## **5. Radionuklidproduktion**

### **5.1 Grundlagen**

# Radionuklidproduktion

---

---

- Voraussetzung sind **Kernreaktionen**, **Verfahren** und **Anlagen** zur Herstellung

*(Schwierigkeit: Umgang mit Radioaktiven Stoffen, hohe Radioaktivität)*

## **Zielstellung:**

- Anwendung von Radioaktivität in Industrie, Wissenschaft, Medizin
- de facto von allen Elementen radioaktive Isotope herstellbar, hohe Isotopenreinheit erforderlich

## **Kernreaktionen:**

- $(n, \gamma)$ ,  $(n, f)$ ,  $(d, n)$ ,  $(p, n)$  u.a.

## **Anlagen:**

- Beschleuniger, Reaktoren, Bestrahlungsquellen

## **Technologien:**

- Separations- und Reinigungsverfahren

## Radioaktive Nuklide die durch (n, $\gamma$ )–Reaktionen im Kernreaktor hergestellt werden

Nuklid	Targetkern (Häufigkeit $h$ in %)	Bestrahltes Material	$\sigma_{th}$ in fm <sup>2</sup>	$T_{1/2}$	$E_{\beta \max}$ in MeV	$E_{\gamma}$ in MeV
$^{24}_{11}\text{Na}$	$^{23}_{11}\text{Na}$ (100)	$\text{Na}_2\text{CO}_3$	53	14,96 h	$\beta^-$ 1,389	1,369 2,754
$^{42}_{19}\text{K}$	$^{41}_{19}\text{K}$ (6,73)	$\text{K}_2\text{CO}_3$	146	12,36 h	$\beta^-$ 3,52 $\beta^-$ 1,97	1,525
$^{59}_{26}\text{Fe}$	$^{58}_{26}\text{Fe}$ (0,3)	$\text{Fe}_2\text{O}_3$	115	45,1 d	$\beta^-$ 0,461 $\beta^-$ 0,269	1,099 1,292
$^{60}_{27}\text{Co}$	$^{59}_{27}\text{Co}$ (100)	Co	3700	5,272 a	$\beta^-$ 0,315	1,173 1,333
$^{75}_{34}\text{Se}$	$^{74}_{34}\text{Se}$ (0,9)	$\text{SeO}_2$	5180	120 d	E	0,265 0,136 0,280
$^{192}_{77}\text{Ir}$	$^{191}_{77}\text{Ir}$ (37,3)	Ir	92400	74,0 d	$\beta^-$ 0,672 $\beta^-$ 0,536 $\beta^-$ 0,240	0,317 0,468
$^{198}_{79}\text{Au}$	$^{197}_{79}\text{Au}$ (100)	Au	9880	2,6935 d	$\beta^-$ 0,961	0,412

# Herstellung von radioaktiven Nukliden im Zyklotron

Nuklid	Erzeugende Reaktion	Target	$T_{1/2}$	$E_{\beta \text{ max}}$ in MeV	$E_{\gamma}$ in MeV
$^{11}_6\text{C}$	$^{10}_5\text{B(d,n)}$	$\text{B}_2\text{O}_3$	20,38 min	$\beta^+$ 0,961	-
$^{13}_7\text{N}$	$^{12}_6\text{C(d,n)}$	$\text{CO}_2$	9,96 min	$\beta^+$ 1,19	-
$^{15}_8\text{O}$	$^{14}_7\text{N(d,n)}$	$\text{N}_2$	2,03 min	$\beta^+$ 1,7	-
$^{18}_9\text{F}$	$^{17}_8\text{O(d,n)}$	$\text{LiCO}_3$	109,7 min	$\beta^+$ 0,635	-
$^{67}_{31}\text{Ga}$	$^{66}_{30}\text{Zn(dn,n)}$	Zn	78,3 h	E	0,093 0,185 0,300
$^{81}_{37}\text{Rb}$	$^{79}_{35}\text{Br}(\alpha,2n)$	NaBr	4,58 h	$\beta^+$ 1,1	0,446
$^{123}_{53}\text{I}$	$^{122}_{52}\text{Te(d,n)}$	$\text{TeO}_2$	13,2 h	E	0,159

---

---

---

## **5.2 Herstellung von Molybdän-99 / Technetium-99m**

---

---

---

---

**- Technetium-99m und Nuklearmedizin**

# Technetium

## - Basis der modernen Nuklearmedizin -

---

---

1937 L. Perrier und E. Segré erzeugen erstmalig das Element 43:



Ab 1960 Versuche zur Nuklearmedizinischen Verwendung (P. Richards),  
Generator:  $^{99}\text{Mo}$  /  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  Generator

Ab 1970 Breite diagnostische Anwendung durch Einführung des Prinzips von  
“Instant”-Kits

Ab 1980 Ausweitung des Kit-Prinzips auf unterschiedliche Organsysteme wie  
Skelett, Ausscheidungsorgane, Lunge...

*Stürmische Entwicklung der Produktion*

Ab 1985  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Pharmaka der 2. Generation  
Diffusible Tracer, Neutrale Tc-Komplexe für Diagnostik von Myocard  
und Hirn, Diagnostika mit spezifischer Ausscheidung

Ab 1995  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Pharmaka der 3. Generation, rezeptorbindende “Reaktive Redox-  
Marker”, metabolisierbare Tracer, Peptide

# Chemie des Technetiums

---

---

- **Radioaktives Element**
- **nur auf künstlichem Wege erzeugbar**
- **Übergangselement der 7. Gruppe des Periodensystems**
- **Oxydationsstufen +7 bis -1, keine freien Kationen**
- **vielfache Komplexierungsreaktionen, Ausgangsverbindung Pertechnetat  $\text{TcO}_4^-$**
- **Synthese von Technetiumkomplexverbindungen mit physiologisch verträglichen Liganden (Substanzen mit  $-\text{O}^-$ ,  $-\text{COO}^-$ ,  $-\text{S}^-$  und  $-\text{NH}_2$  Donatoren) gelingt in wässriger Lösung erst nach Reduktion des Tc(VII) in niedere Oxydationsstufen (+5, +4, +3), Tendenz der Reaktion mit „weichen“ Donoren (P, S)**

# Technetium-99m

## „Working Horse“ der Nuklearmedizin

---

---

---

- Kurze, aber für nuklearmedizinische Untersuchungen ausreichende **Halbwertszeit von 6,04 h**
- Die Emission **niederenergetischer  $\gamma$ -Strahlung von 140 kV**. Diese Energie liegt im optimalen Bereich der Nachweisempfindlichkeit der Detektoren
- **Keine Emission von  $\beta$ -Teilchen**, dadurch werden lokale Strahlenbelastungen vermieden
- **Hohe Verfügbarkeit**, Durch die Benutzung von  $^{99}\text{Mo}$  /  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Generatoren kann  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  periodisch am Ort seiner Verwendung erzeugt und weiterverarbeitet werden
- Die **Markierbarkeit** einer großen Anzahl von medizinisch relevanten Substanzen mit  $^{99\text{m}}\text{Tc}$

---

---

---

---

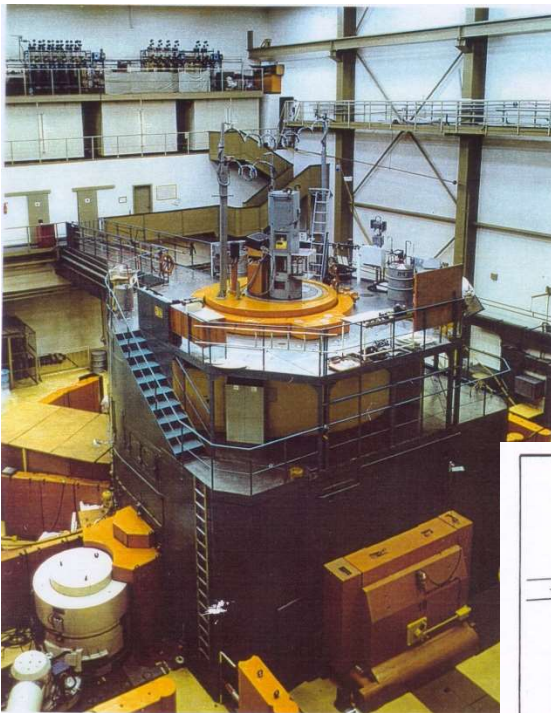
**- Herstellung von  $^{99}\text{Mo}$  /  $^{99\text{m}}\text{Tc}$**

# Molybdän-99 / Technetium-99m Herstellung

-  $^{99}\text{Mo}$  Ausgangsprodukt für nuklearmedizinisch relevantes  $^{99\text{m}}\text{Tc}$

- Verfahren zur  $^{99}\text{Mo}$  Herstellung:

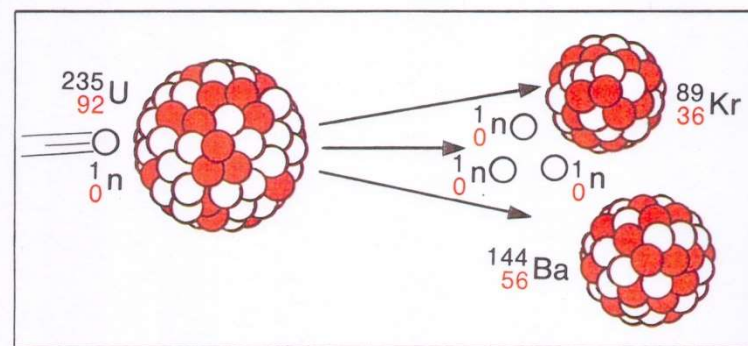
- Neutronenaktivierung
- Kernspaltung



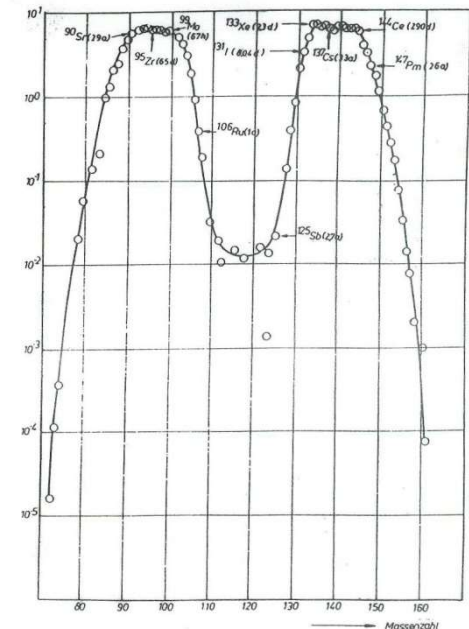
VKTA

← **Target** (Mo bzw. angereichertes U)

← **Neutronen**



11.)



8.)

## - Verfahren zur $^{99}\text{Mo}$ Herstellung

---

---

### - Neutronenaktivierung [ $^{98}\text{Mo}$ (n, $\gamma$ ) $^{99}\text{Mo}$ ]

#### Target:

Metallisches Molybdän, Molybdäntrioxid

- \* Naturmolybdän (23,75% an  $^{98}\text{Mo}$ )

- \* an  $^{98}\text{Mo}$  angereichertes Molybdän

#### Technologie/Produkt:

Auflösung in Lauge, Mo-Extraktion, Sublimation, geringe Kontaminationen,

Nachteil: geringe spezifische Aktivität

### - Kernspaltung [ $^{235}\text{U}$ ...fission... $^{99}\text{Mo}$ ]

#### Target:

Uranoxid

- \* Natururan (0,7%  $^{235}\text{U}$ )

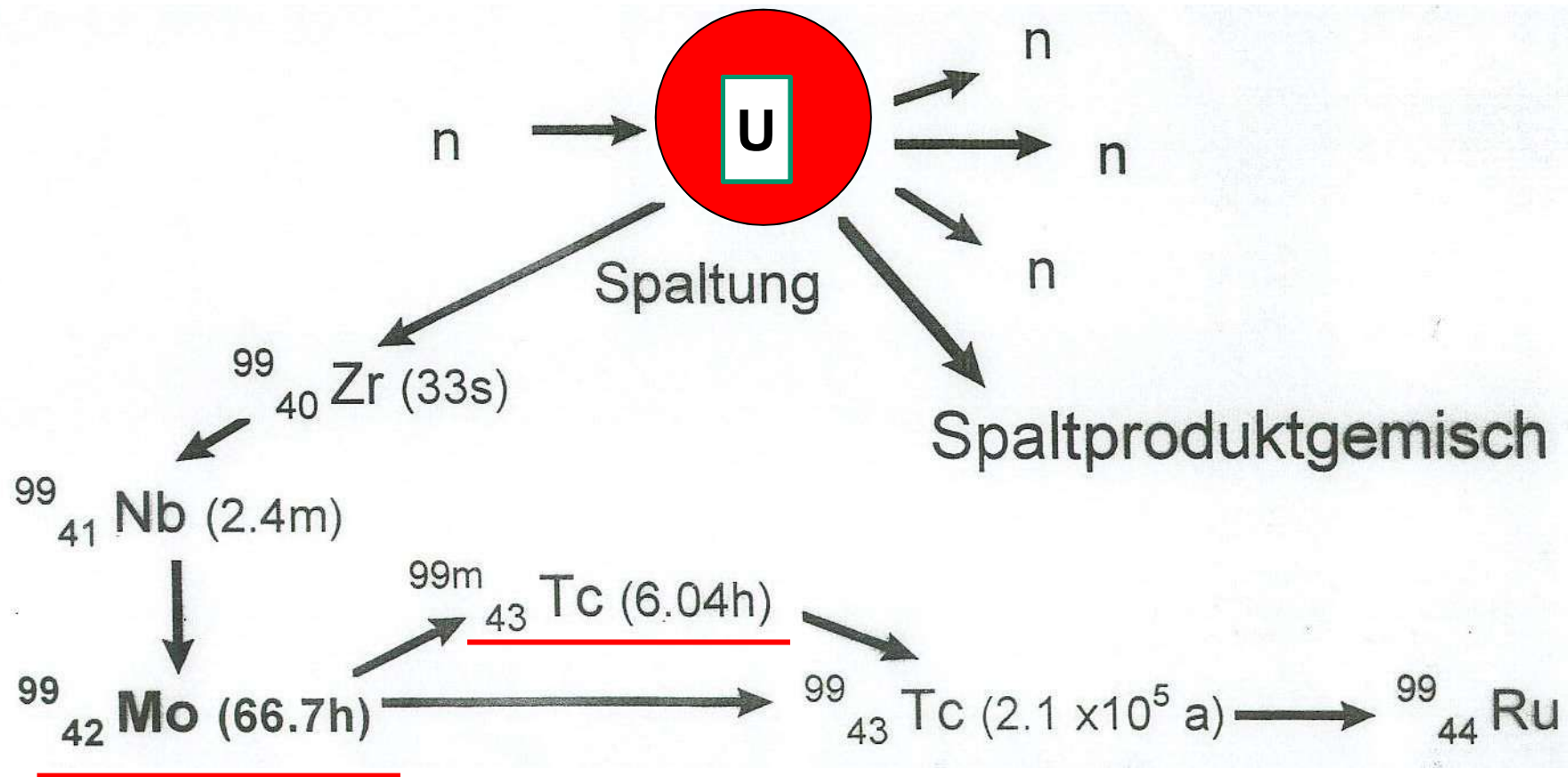
- \* an  $^{235}\text{U}$  angereichertes Uran

#### Technologie/Produkt:

Auflösung in Säure oder Lauge, Extraktion/Ionenaustausch, Sublimation, komplizierter Trennungsgang, viele Begleitnuklide

Vorteil: hohe, notwendige spezifische Aktivität

# Erzeugung von Molybdän-99 durch Kernspaltung



# Technologie: Aufarbeitung eines originalen Brennelements eines Forschungsreaktors (I)

Target: BE ECH-1, WWR-M

- Charakteristik

- Auflöseprozess

## Abmessungen

Gesamtlänge 840 mm  
aktive Länge 640 mm  
Durchmesser außen 37 mm

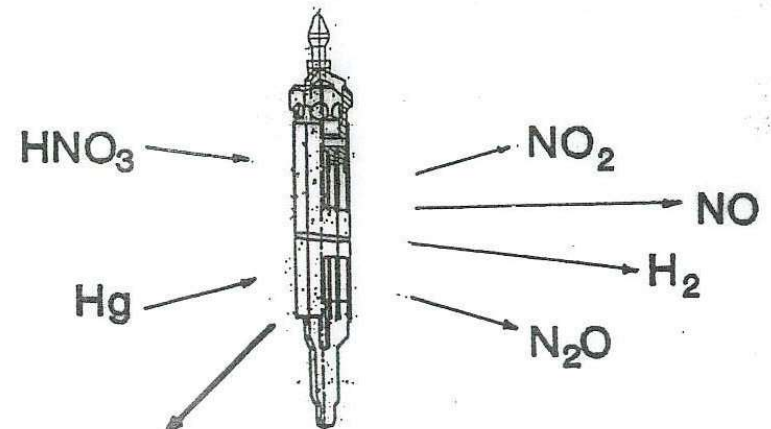
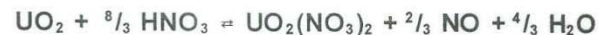
Masse Uran 120 g  
Masse Uran-235 43 g  
Masse Aluminium ca. 900 g  
Bestrahlungszeit 200 h  
Neutronenfluß  $5 \cdot 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}$

## Lösen mit Natronlauge:



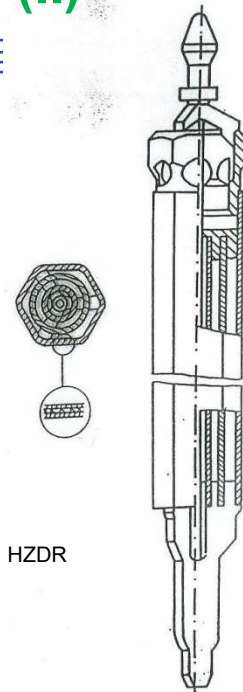
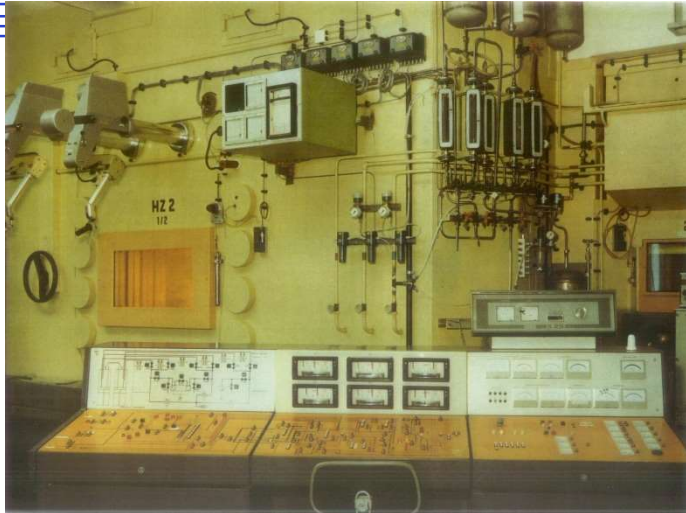
## Lösen mit Salpetersäure: (AMOR-Verfahren)

( $\text{HNO}_3$ ) = 6 M, äquimolekular



Substanz	Konzentration (g/l)
$\text{Al}(\text{NO}_3)_3$	329,4
$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$	8,5
$\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$	0,31
Spaltprodukte	0,025
Mo	<u>0,002</u>
Pu	<0,001
Si/SiO <sub>2</sub>	0,5... 1
$\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$	0,3

# Technologie: Aufarbeitung eines originalen Brennelements eines Forschungsreaktors (II)

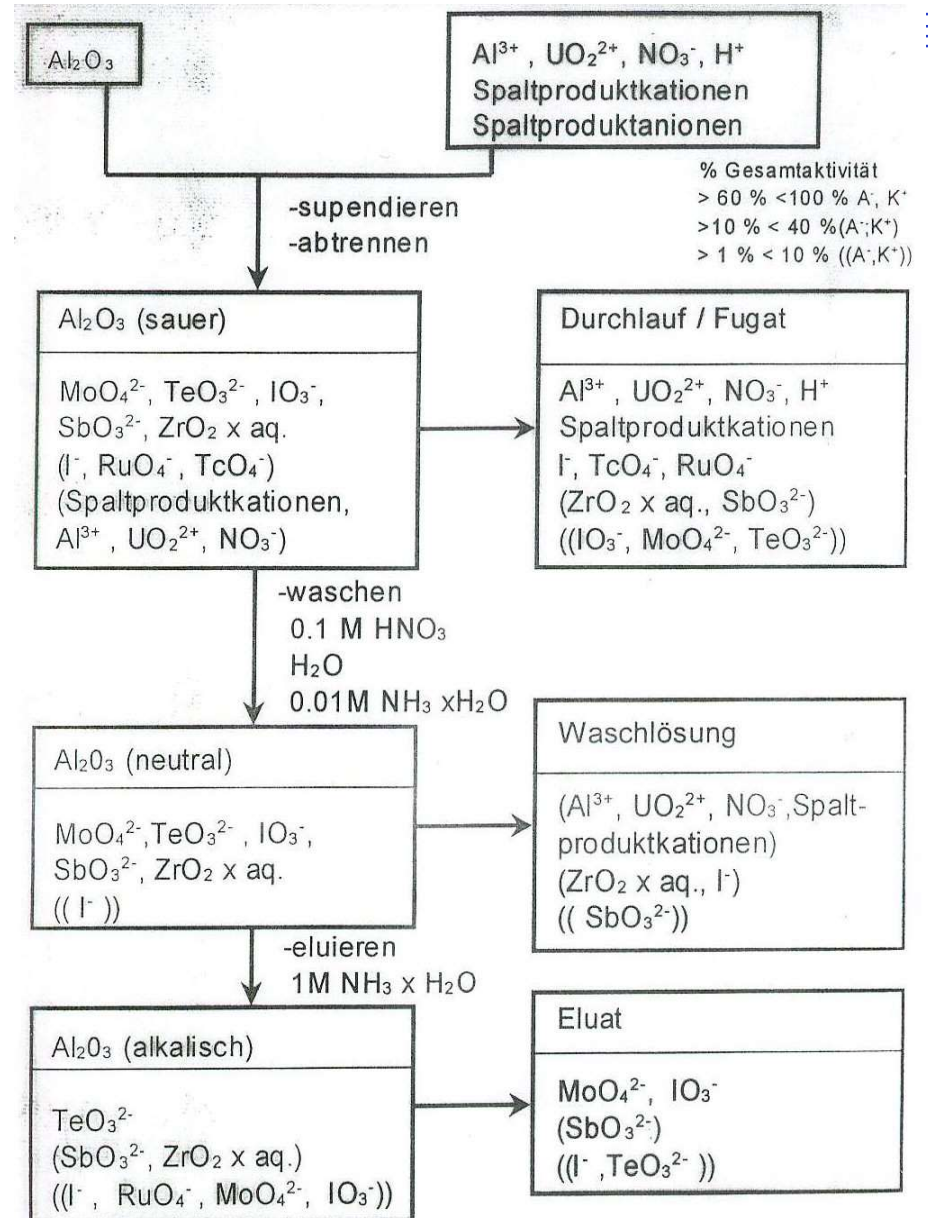


HZDR



(Anlage zur **Mo-99** Produktion **Rossendorf**  
- **AMOR** -, ZfK Rossendorf)

## - Trennprozess



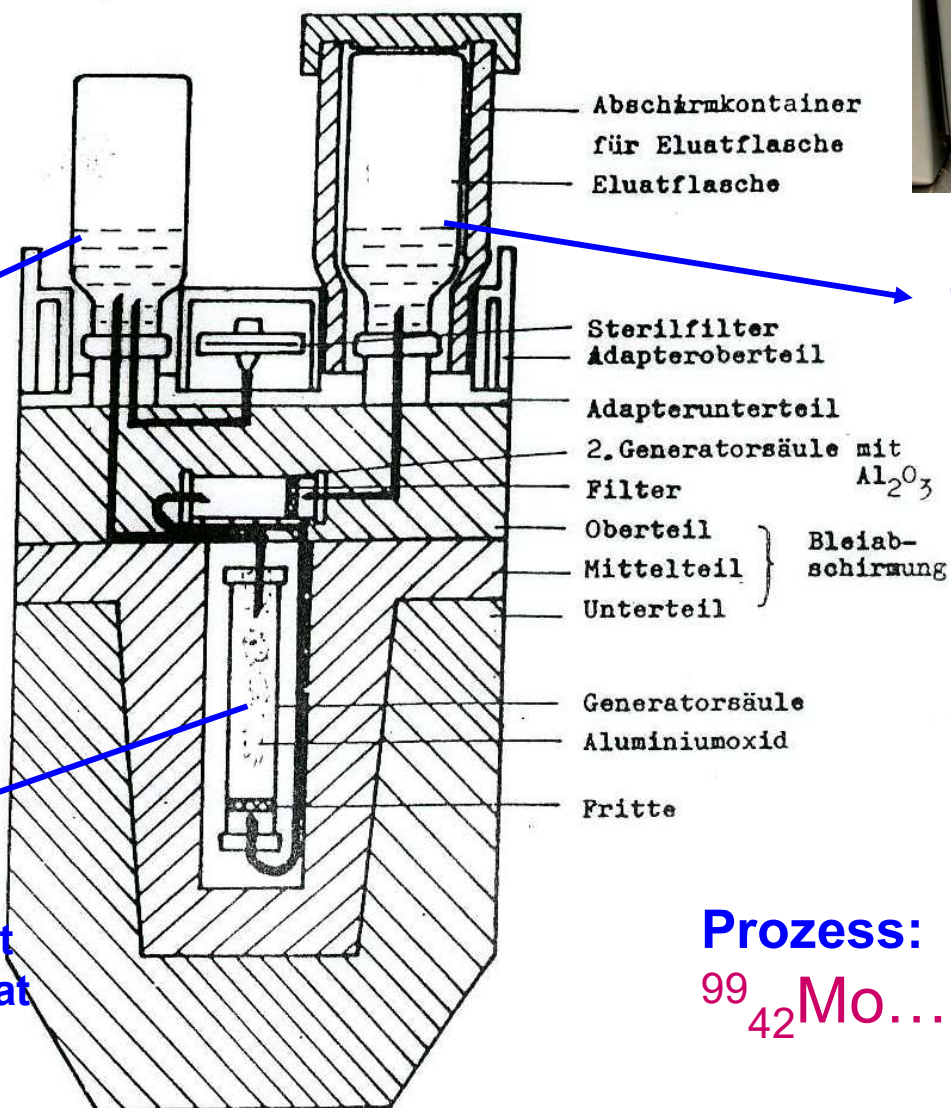
# $^{99}\text{Mo}$ / $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Sterilgenerator



en.wikipedia.org

Elutionslösung  
 $\text{NaCl}$

$^{99}\text{Mo}$  als Molybdat  
im Gleichgewicht mit  
 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  als Pertechnetat



chemie-master.de

$^{99\text{m}}\text{Tc}$  als  
Pertechnetatlösung  
 $\text{TcO}_4^-$

Prozess:

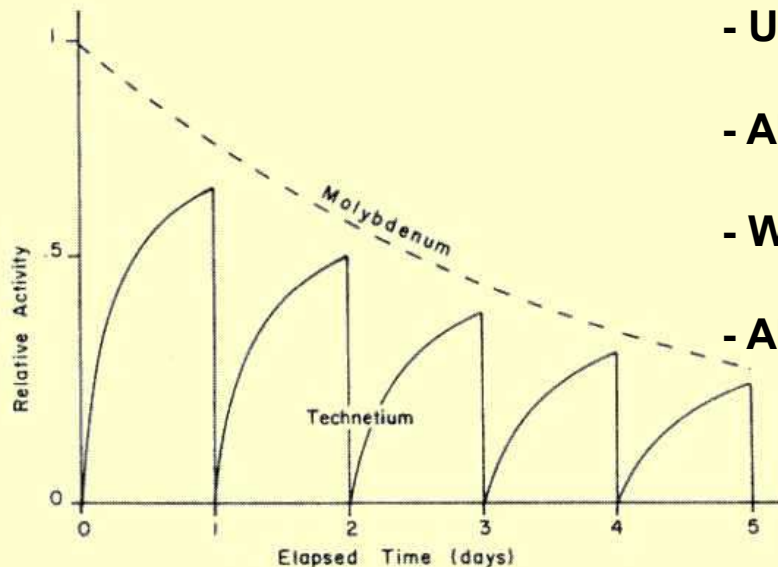


# $^{99}\text{Mo}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ - Generator

- Transientes oder laufendes Gleichgewicht:

- Mutternuklid  $^{99}\text{Mo}$ , HWZ= 66,7 h

- Tochternuklid  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , HWZ = 6,04 h

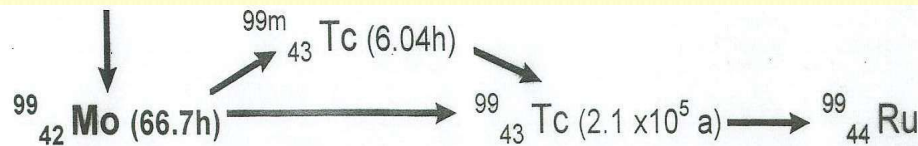


- Umwandlung von  $^{99}\text{Mo}$  zu  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ...Gleichgewicht

- Abtrennung/Elution von  $^{99\text{m}}\text{Tc}$

- Wartezeit...Anklingen des von  $^{99\text{m}}\text{Tc}$

- Abklingen von  $^{99}\text{Mo}$

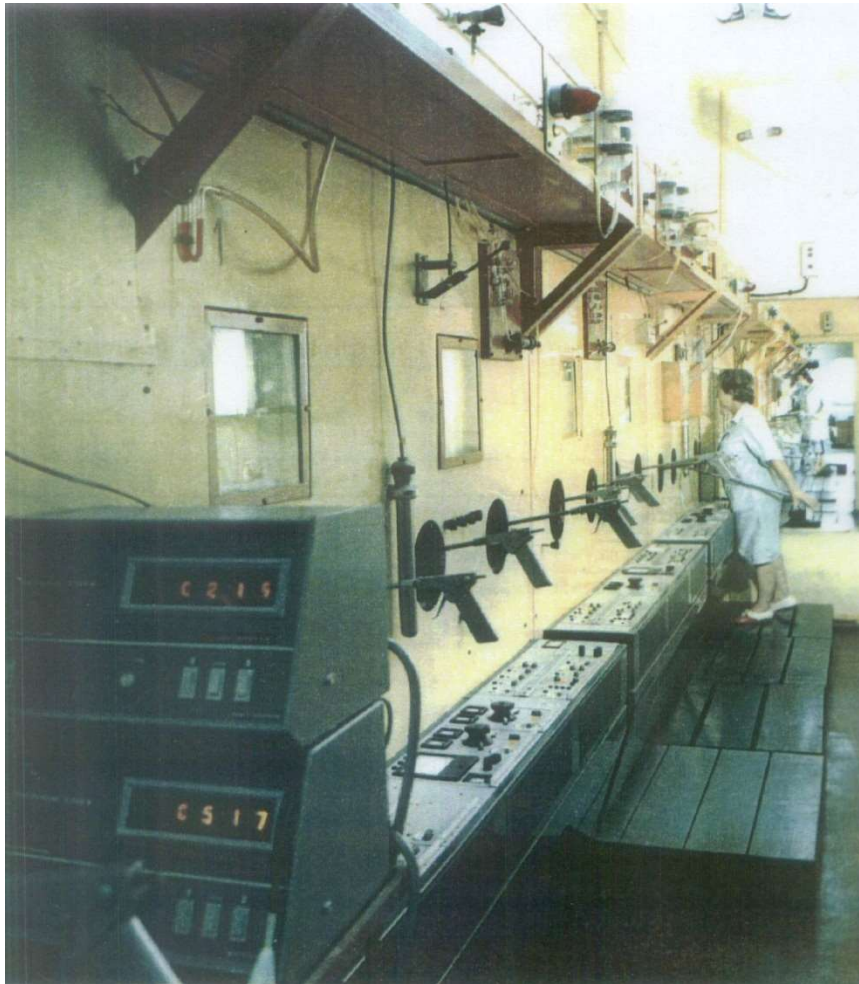


# Anlage zur Herstellung von Radiopharmaka

---

---

---



**„Warme Zellen“ der Isotopenproduktion  
(ZfK Rossendorf)**

HZDR

# Radionuklidgeneratoren

## Beispiele:

Tochter (Zielnuklid)	HWZ (2)	Zerfall (/MeV)	Mutter	HWZ (1)	Chemische Trennung	Verfügbarkeit	Anwendungen
$^{68}\text{Ga}$	68,3 min	$\beta^+(1,900)$ $\gamma(1,077)$	$^{68}\text{Ge}$	288 d	FC, IA, ExC feste Phase	Kommerzieller Bezug	Nuklearmedizin, Forschung
$^{81\text{m}}\text{Kr}$	13,3 sec	$\gamma(0,190)$	$^{81}\text{Rb}$	4,58 h	feste Phase (Gasausspülung)	Kommerzieller Bezug	Nuklearmedizin, (Luftchemie)
$^{90}\text{Y}$	64,1 h	$\beta^-(2,288)$	$^{90}\text{Sr}$	28,5 a	IA, ExC	Laborsystem	Nukleare Analytik
$^{87\text{m}}\text{Sr}$	2,81 h	$\gamma(0,388)$	$^{87}\text{Y}$	80,3 h	IA, ExC (Flüssiggenerator)	Laborsystem	Analytik, Forschung
$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6,02 h	$\gamma(0,141)$	$^{99}\text{Mo}$	66,0 h	feste Phase, Extraktion	Kommerzieller Bezug	Nuklearmedizin, Industrie/Technik
$^{113\text{m}}\text{In}$	99,48 min	$\gamma(0,392)$	$^{113}\text{Sn}$	115,1 d	FC, IA, ExC feste Phase	Kommerzieller Bezug	Nuklearmedizin, Industrie/Technik
$^{132}\text{I}$	2,30 h	$\beta^-(2,156)$ $\gamma(0,688,$ $0,773 \dots)$	$^{132}\text{Te}$	76,3 h	feste Phase (Flüssiggenerator)	Laborgenerator	Industrie/Technik, Forschung
$^{137\text{m}}\text{Ba}$	2,55 min	$\gamma(0,662)$	$^{137}\text{Cs}$	30,17 a	IA, feste Phase	Laborgenerator	Technik/Standard, Forschung

---

---

---

## **5.3 Anwendung von Radionukliden in Medizin, Technik und Forschung**

---

---

---

---

---

**- Anwendung von Technetium-99m**

# Nuklearmedizinische Anwendung von Technetium-99

---

---

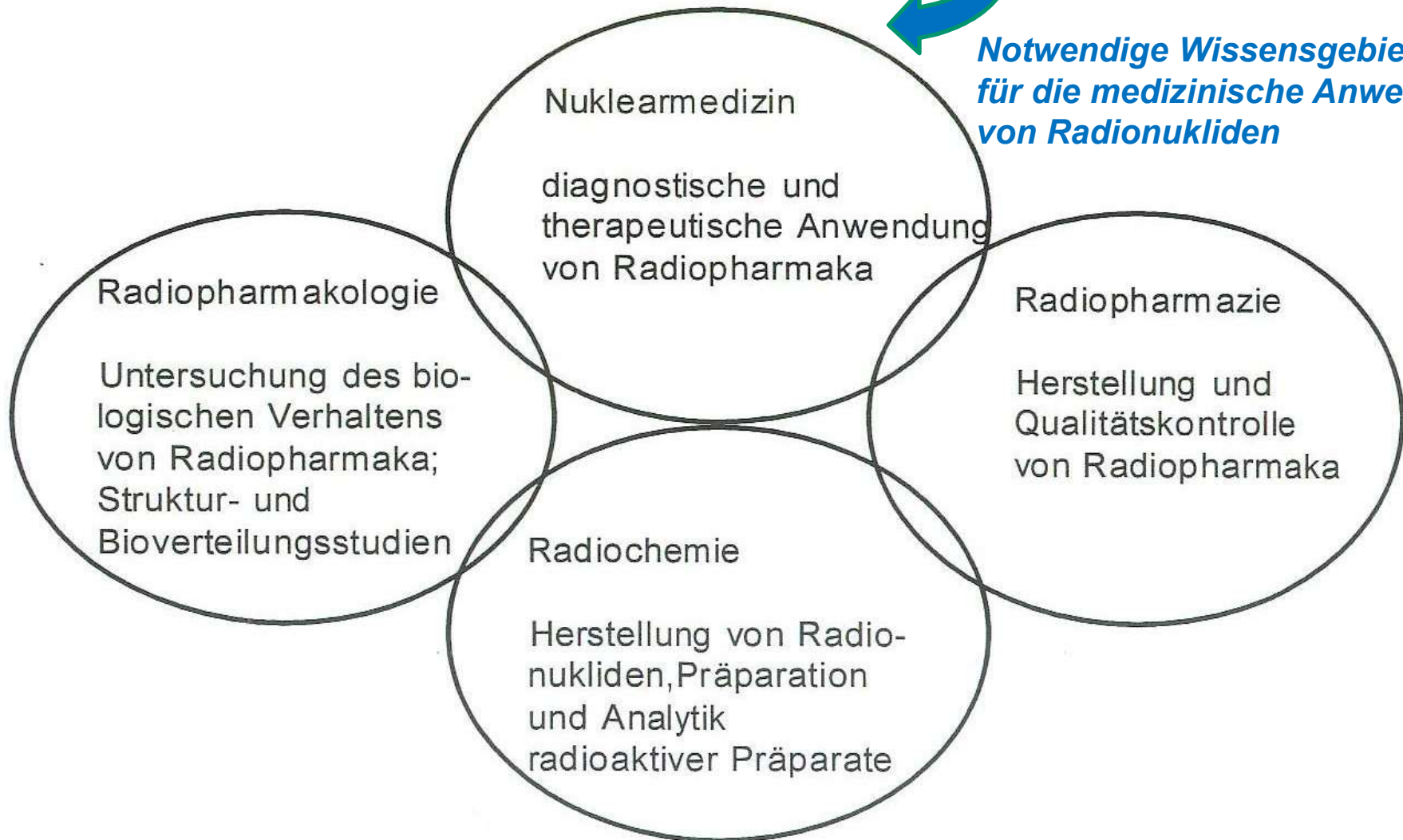
---

- **Erzeugung**
- **Umsetzung zum Radiopharmakon**
- **Medizinische Anwendung**

# Wissenschaftsgebiete



*Notwendige Wissensgebiete  
für die medizinische Anwendung  
von Radionukliden*

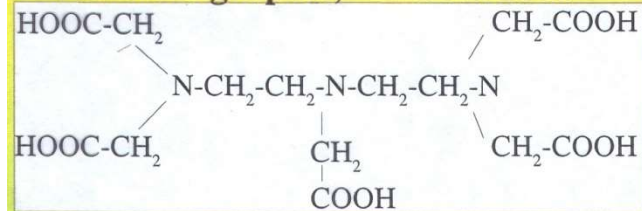


# $^{99m}\text{Tc}$ - Radiopharmaka

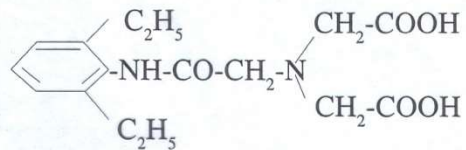
## Schilddrüsenszintigraphie, $^{99m}\text{Tc}$ -Pertechnetat



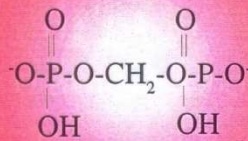
## Nierenszintigraphie, $^{99m}\text{Tc}$ -DTPA



## Leberszintigraphie, $^{99m}\text{Tc}$ -EHIDA



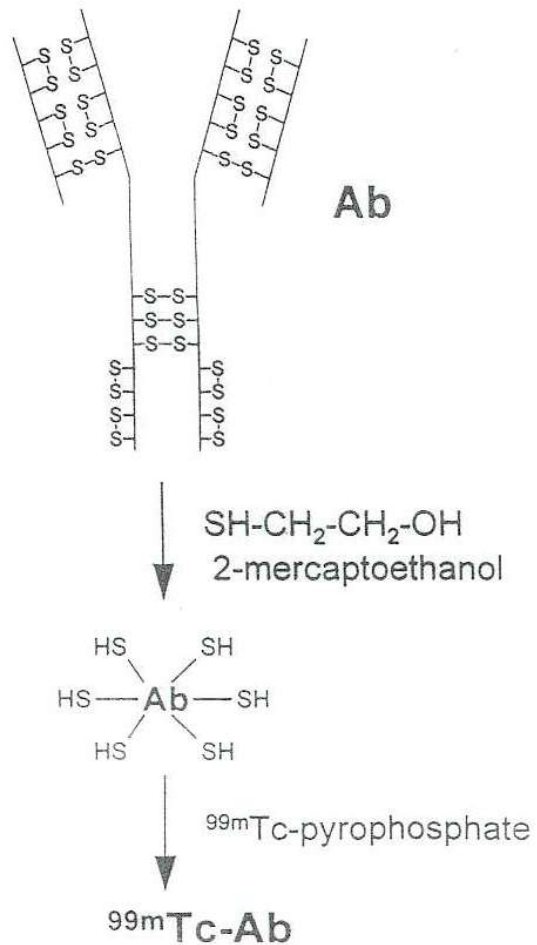
## Skelettszintigraphie, $^{99m}\text{Tc}$ -MDP



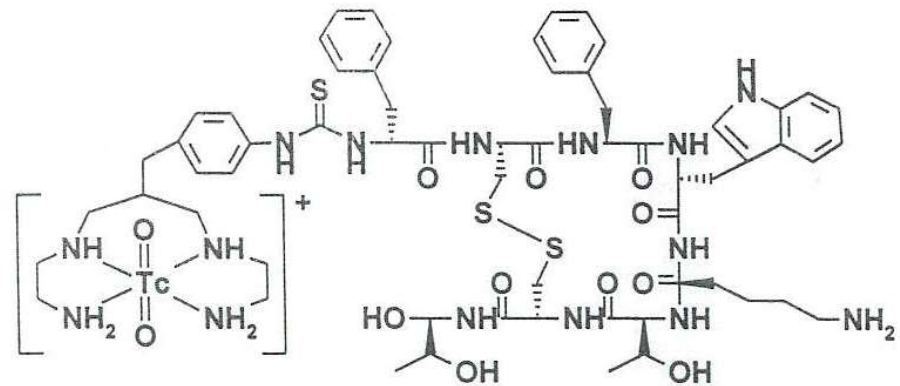
HZDR

# $^{99m}\text{Tc}$ -markierte Peptide

## Ab-Markierung nach Schwarz (Direktmarkierung)



## Octreotid-(somatostatinanalog)-Markierung nach Mäcke (Indirektmarkierung)



## Auswahl von In-vivo $^{99m}\text{Tc}$ - Radiopharmaka

---



---

Radiopharmakon	Anwendungsbereich
$^{99m}\text{TcO}_4^-$	Hirn, Blutvolumen, Schilddrüse
$^{99m}\text{Tc}$ -Humanserumalbumin	Blutvolumen
$^{99m}\text{Tc}$ -Humanserumalbumin- Makroaggregate	Lunge
$^{99m}\text{Tc}$ -Humanserumalbumin- Mikrosphären	Lunge, Milz, Leber, Herz
$^{99m}\text{Tc}$ -Schwefelkolloid	Leber, Milz
$^{99m}\text{Tc}$ -Phytat	Leber, Milz
$^{99m}\text{Tc}$ -Methan-1,1-diphosphonat	Skelett
$^{99m}\text{Tc}$ -1-Hydroxyethan-1, 1-diphos- phonat	Skelett
$^{99m}\text{Tc}$ -Phosphat	Skelett, Herz, Gelenk
$^{99m}\text{Tc}$ -Erythrozyten	Kreislauf, Blutvolumen
$^{99m}\text{Tc}$ -Dimercaptosuccinat	Niere
$^{99m}\text{Tc}$ -Gluconat	Niere
$^{99m}\text{Tc}$ -Diethylentriaminpentaacetat	Niere, Hirn
$^{99m}\text{Tc}$ -N(2,6-Diethylphenylcarbamoyl)- iminodiacetat	Leber, Galle

# Strahlenbelastung durch Radiopharmaka

---

---

$^{99m}\text{Tc}$ -Pertechnetat	Schilddrüsenuntersuchung	40 MBq $^{99m}\text{Tc}$	92 $\mu\text{Gy}/\text{MBq}$ Schilddrüse
$^{99m}\text{Tc}$ - Diphosphonat	Knochenszintigraphie	400 MBq $^{99m}\text{Tc}$	11 $\mu\text{Gy}/\text{MBq}$ Skelett 8 $\mu\text{Gy}/\text{MBq}$ Nieren
$^{99m}\text{Tc}$ - DMSA	Nierenszintigraphie	50 MBq $^{99m}\text{Tc}$	200 $\mu\text{Gy}/\text{MBq}$ Nieren

---

---

---

---

---

---

**- Nutzung von Positronen-Strahlern**

# Positronenstrahler in der Nuklearmedizin und Forschung

## Eigenschaften:

Nuklid	Halbwertszeit (min)	maxim. Energie (MeV)	maxim. Reichweite (mm H <sub>2</sub> O)	maxim. spez. Aktivität (GBq/mol)	Kernreaktionen
Kohlenstoff-11	20,4	0,97	4,1	$3,4 \times 10^{11}$	$^{10}\text{B}(\text{d},\text{n})^{11}\text{C}$ $^{11}\text{B}(\text{p},\text{n})^{11}\text{C}$ $^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)^{11}\text{C}$
Stickstoff-13	9,96	1,19	5,4	$7,0 \times 10^{11}$	$^{12}\text{C}(\text{d},\text{n})^{13}\text{N}$ $^{16}\text{O}(\text{p},\alpha)^{13}\text{N}$ $^{13}\text{C}(\text{p},\text{n})^{13}\text{N}$
Sauerstoff-15	2,05	1,72	8,2	$3,4 \times 10^{12}$	$^{14}\text{N}(\text{d},\text{n})^{15}\text{O}$ $^{15}\text{N}(\text{p},\text{n})^{15}\text{O}$
Fluor-18	109,7	0,64	2,4	$6,3 \times 10^{10}$	$^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})^{18}\text{F}$ $^{20}\text{Ne}(\text{d},\alpha)^{18}\text{O}$

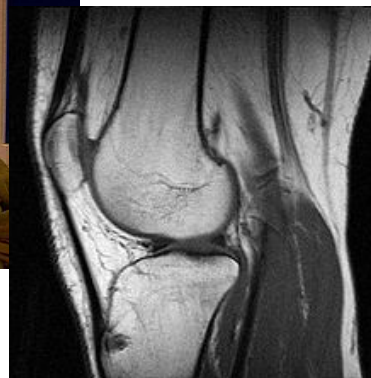
# Bildgebende Verfahren in der Medizin

I

- Röntgentomographie (CT)
- Magnetresonanztomographie (MRT)



MRT-Gerät Philips Archieva 3T



MRT Kniegelenk



Multidetektor-CT-System



Darstellung von Abdomen und Becken;  
zu erkennen sind u. a. Leber und Nieren.

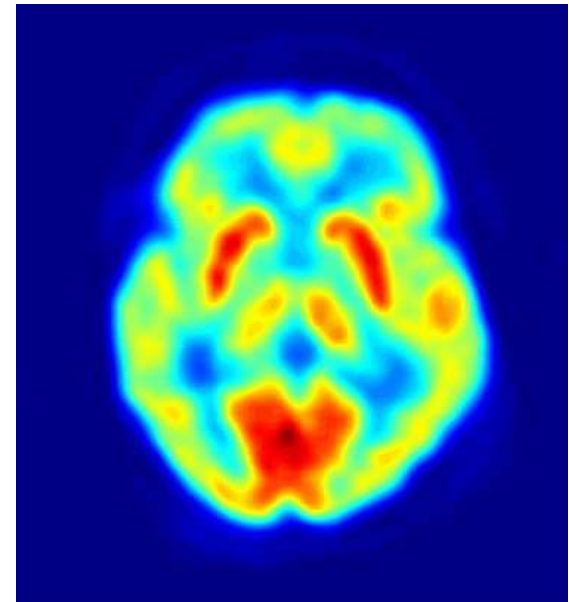
# Bildgebende Verfahren in der Medizin

## II

### - Positronen - Emissions - Tomographie



Schnittbild Hirn  
 $^{18}\text{F}$  Fluorodesoxyglucose

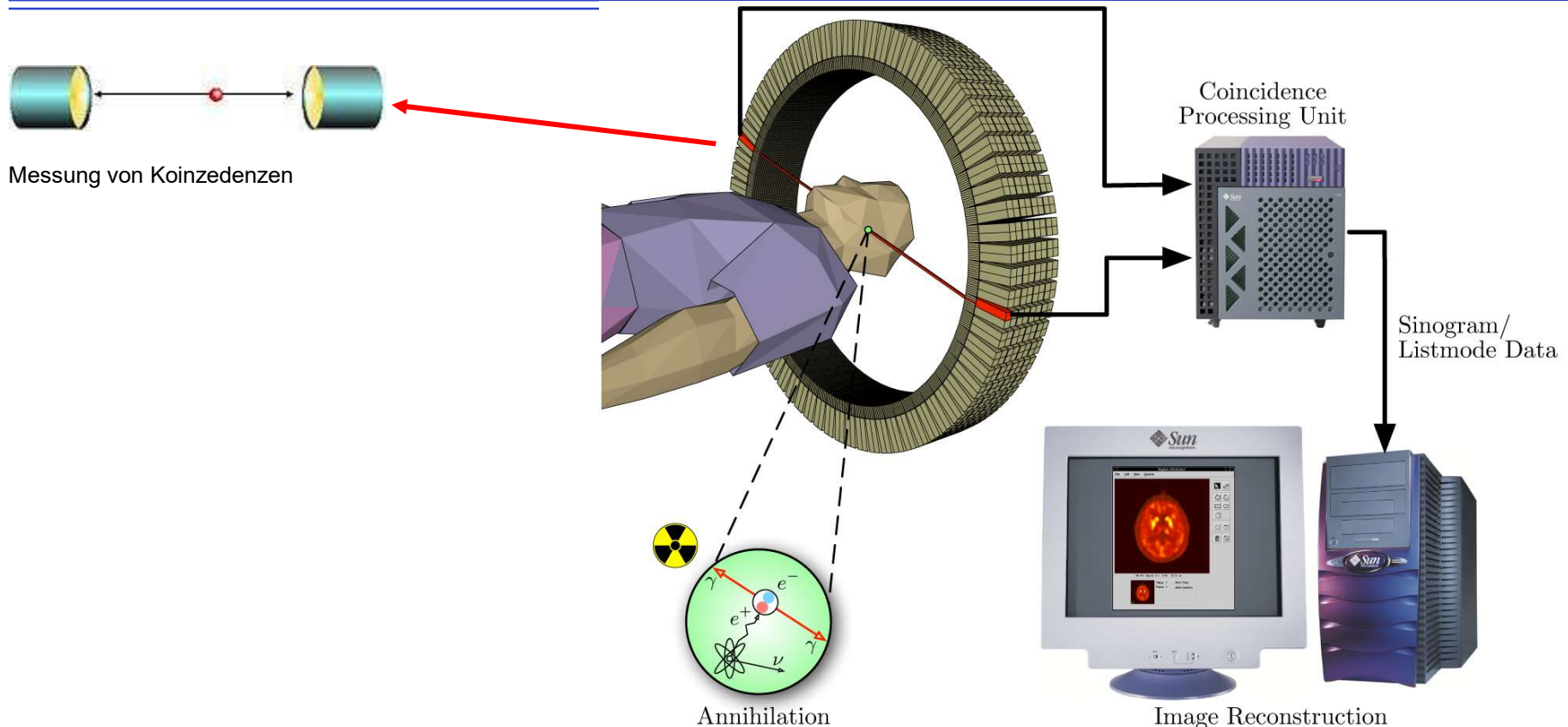


Scanner



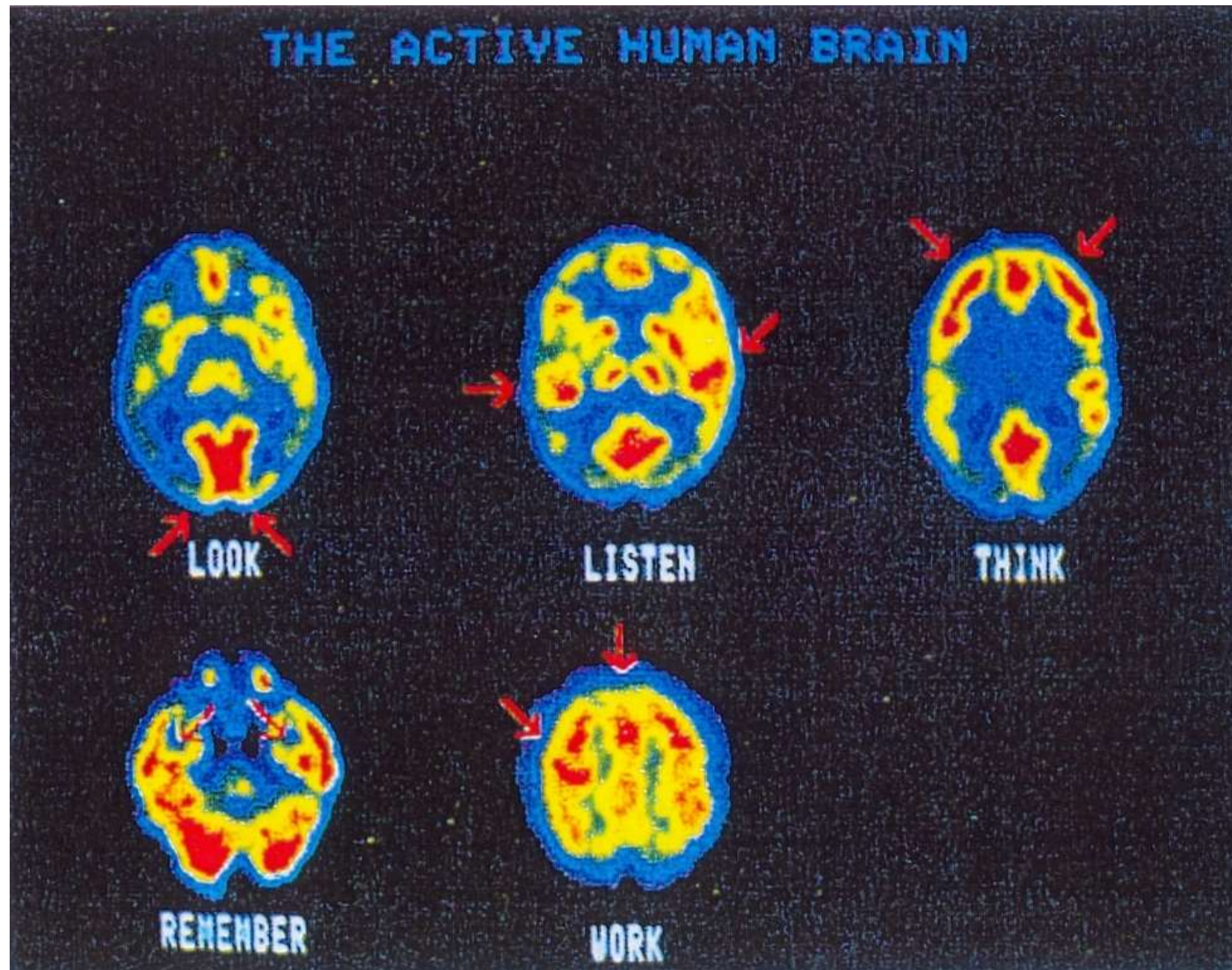
***Kombination von Verfahren***

# Tomographie (Prinzip)

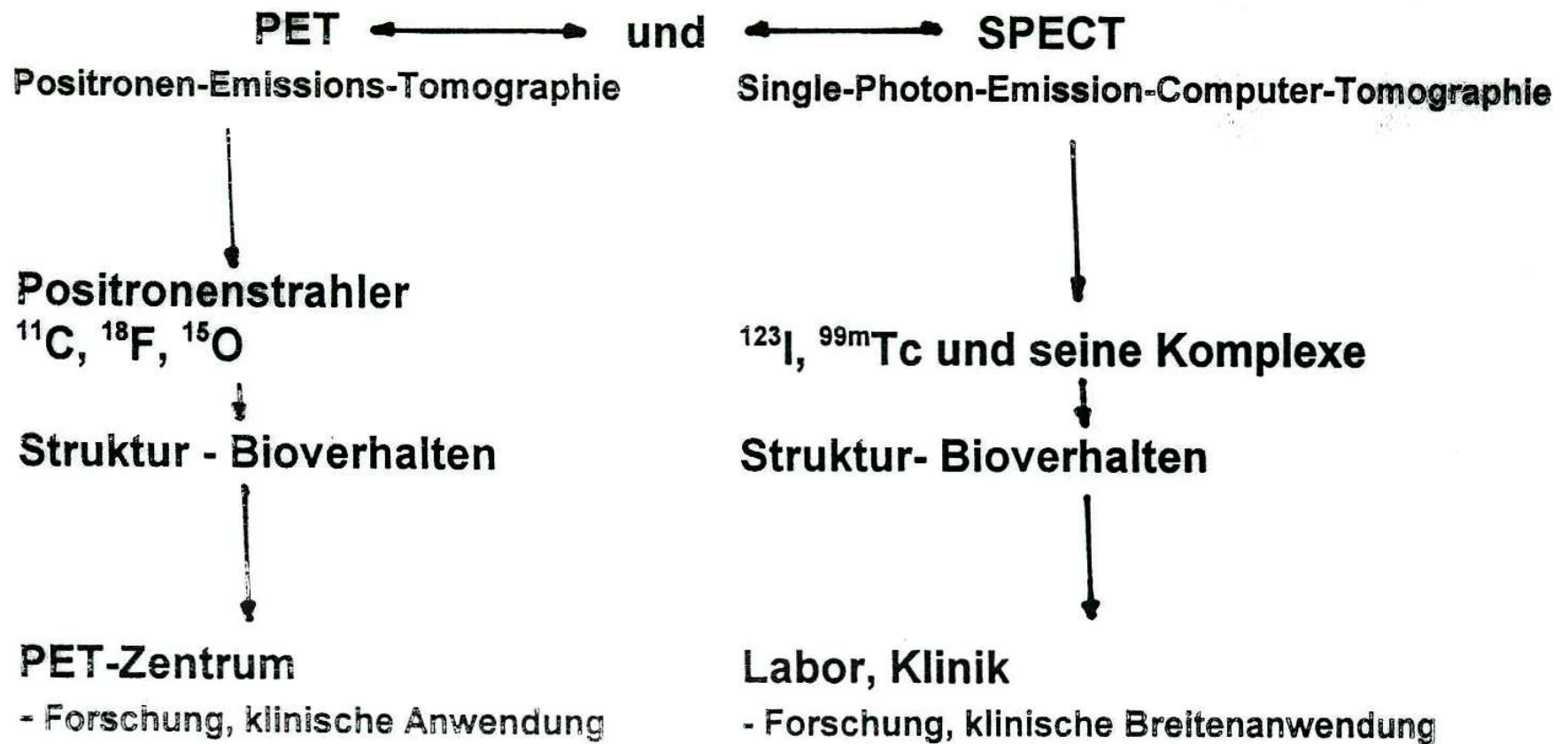


- Trifft ein durch Zerfall des Radionuklids entstandenes Positron auf ein Elektron werden beide vernichtet (Annihilation). Es entstehen zwei hochenergetische Photonen (Gammastrahlung) einer Energie von exakt 511 keV, die sich in einem Winkel von knapp  $180^\circ$  voneinander entfernen.
- Diese Vernichtungsstrahlung trifft gleichzeitig (koinzident) zwei Detektoren, was Nachweis und Ortsbestimmung der Positronenemission ermöglicht.
- Werden zwei  $\gamma$ -Quanten einer Energie von 511 keV zeitgleich nachgewiesen (typische Zeitfenster der Nachweiselektronik 4 bis 15 ns) wird dies als Positron-Elektron-Vernichtung auf der gedachten Linie zwischen den signalgebenden Detektoren interpretiert.

# Unterschiedliche Radioaktivitätsverteilung im menschlichen Hirn beim Sehen, Hören, Denken, Erinnern, Arbeiten



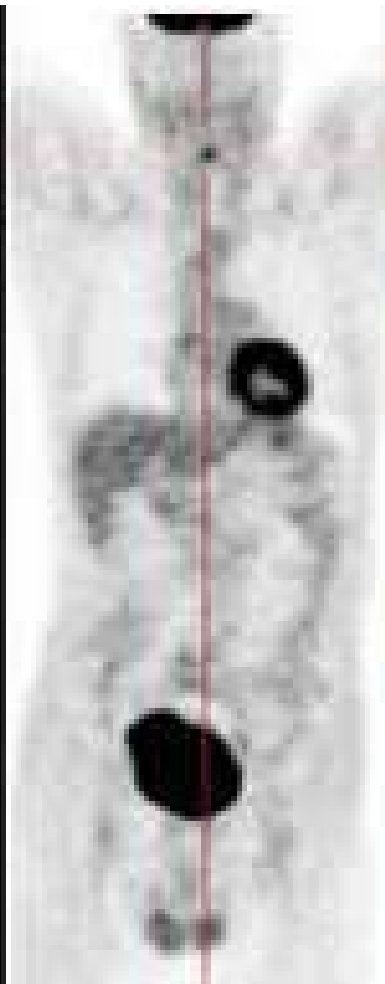
# Zusammenhang



# Kombination der Methoden



CT



PET

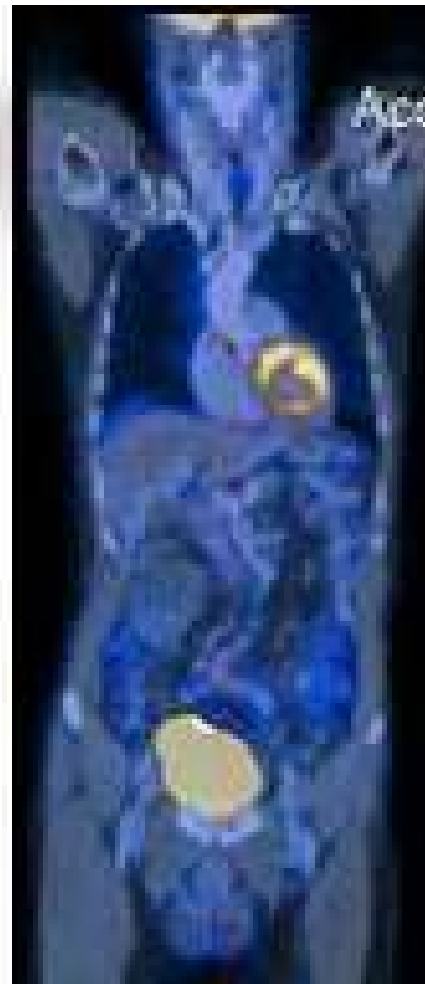


Bild Kombination



PET/MRT-Gerät, HZDR

---

---

---

---

## **- Radionuklidanwendung in Batterien**

# Radionuklidbatterien

---

**Die bei der Radioaktiven Umwandlung freiwerdende Energie kann in Radionuklidbatterien letztlich in elektrische Energie umgewandelt werden**

## **- Thermoelektrische Konversion**

Zweistufig: Strahlungsenergie umgesetzt im Absorber in Wärme mittels Halbleiterelementen (z.B. Bi/Te, Ge/Si) erfolgt Umwandlung der thermischen in elektrische Energie

$^{238}_{94}\text{Pu}$  Metall (150 mg/Schrittmacher), Oxid, Nitrid,

$^{237}\text{Np}$  (n, $\gamma$ ),  $^{238}\text{Np} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$ , größte technische Bedeutung,  $10^2 \mu\text{W}$  bis  $10^2 \text{ W}$

## **- Thermoionische Konversion**

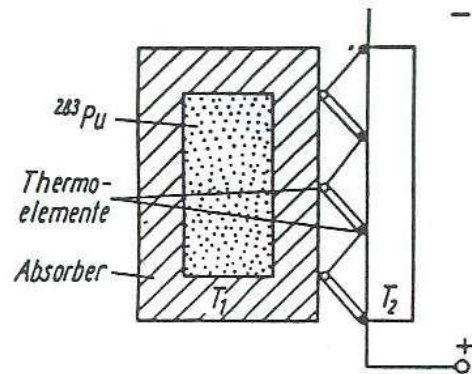
Kinetische Energie von  $\alpha, \beta$ -Teilchen in Wärme umwandeln, Wärme bewirkt Glühemission von Elektronen aus Emittern

$^{238}_{94}\text{Pu}$ ,  $^{232}_{92}\text{U}$ ,  $^{242}_{96}\text{Cm}$ ,  $10^2 \text{ mW}$  bis  $10^5 \text{ W}$

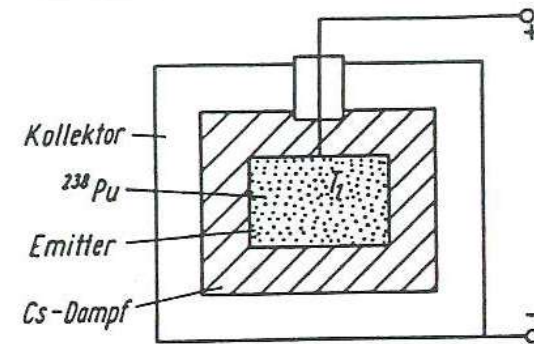
## **- Photoelektrische Konversion**

Strahlung zur Anregung eines Leuchtstoffes verwendet, emittiertes Lumineszenzlicht wird in Photoelementen in elektrische Energie umgewandelt. Leuchtstoffe: ZnS:Cu, ZnCdS:Ag, wegen Schädigung des Leuchtschirmes nur energiearme  $\beta$ -Strahler  $^{147}_{61}\text{Pm}$  mit Leuchtstoff vermischt,  $10^2 \text{ mW/m}^2$

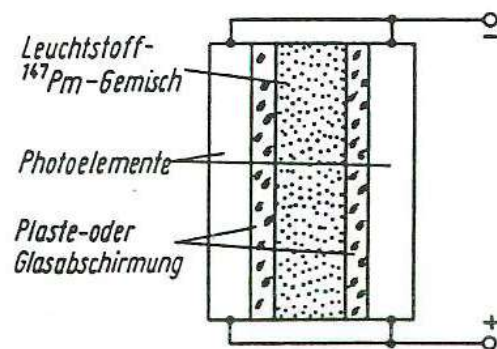
# Schema Radionuklidbatterien



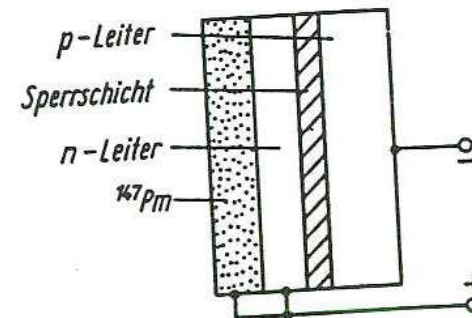
Thermoelektrische Konversion



Thermoionische Konversion



Photoelektrische Konversion



Betavoltaische Konversion

## In Batterien genutzte Radionuklide

Nuclide	Half-life	Emitted radiation	Compound used	Power density in compound used ( $\text{W cm}^{-3}$ )	Radiation protection requirement	Production
Co-60	5.26y	$\beta, \gamma$	Metal	15.2	Great	Neutron irradiation of cobalt
Sr-Y-90	28 y	$\beta, \gamma$	$\text{SrTiO}_3$	Great	0.82	Fission product
Cs-Ba-137	30 y	$\beta, \gamma$	$\text{CsCl}$	0.42	Great	Fission product
Ce-144	284 d	$\beta, \gamma$	$\text{CeO}_2$	25.3	Great	Fission product
Pm-147	2.62 y	$\beta$	$\text{Pm}_2\text{O}_3$	1.8	Relatively small	Fission product
Po-210	138 d	$\alpha$	$\text{GdPo}$	824	Small	Neutron irradiation of bismuth
Ac-227	27 y	$\alpha, \beta, \gamma$	$\text{Ac}_2\text{O}_3$	100	Great	neutron irradiation of radium
Pu-238	86 y	$\alpha$	$\text{PuO}_2$	3.6	Small	Neutron irradiation of Np-237 or $\alpha$ -decay of Cm-242
Cm-242	163 d	$\alpha, n$	$\text{Cm}_2\text{O}_3$	882	Moderate	Neutron irradiation of Am-241
Cm-244	18 y	$\alpha, n$	$\text{Cm}_2\text{O}_3$	22.5	Moderate	Neutron irradiation of Pu-242 or Am-243

---

---

---

## **5.4    Synthese künstlicher Elemente**

# Synthese künstlicher Elemente

---

---

## Fragestellung:

- *Wo ist Ende des Periodensystems?*
- *Zusammenhang Periode und chemische Eigenschaften*
- *Nachweis und Ableitung von Eigenschaften aus wenigen Atomen*
- *Klärung/Erklärung durch „Relativistischen Effekt“  
(Zusammendrängen der großen Anzahl an Elektronen bei schweren Elementen, Elektronen haben höhere Energie, damit höhere Masse, ab Gold bemerkbar, E-112 sollte sich z.B. wie ein Edelgas verhalten!?)*

# Synthese künstlicher Elemente

- Stand 1939 waren incl. des Urans 88 Elemente gefunden
- vier fehlenden (radioaktive) Elemente Technetium, Promethium, Astat, Francium
- Inzwischen Elemente bis zur Kernladungszahl  $Z = 112 \dots 114 \dots 120$  synthetisiert
- Alle „schwersten“ Transuranelemente sind radioaktiv mit geringen Halbwertszeiten der bisher bekannten Isotope
- Radioaktive Umwandlung:  $\alpha$ -Umwandlung, Spontanspaltung
- Große Schwierigkeiten bei Nachweis und bei chemisch-physikalischer Charakterisierung

**Periodensystem der Elemente**

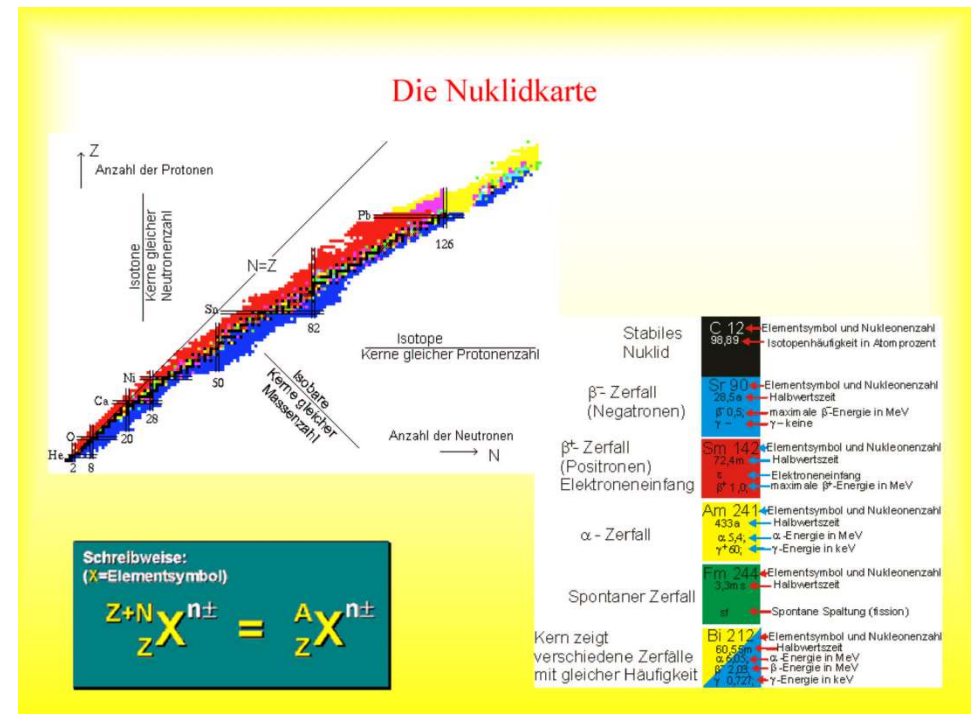
The periodic table shows elements from Hydrogen (1) to Oganesson (118). Elements 114 (Flerovium) and 116 (Livermorium) are highlighted in yellow. A legend at the bottom left identifies element types by color: Nonmetals (orange), Metalloids (light green), Transition metals (blue), Metals (green), Alkaloids (dark green), Halogens (purple), and Noble gases (pink). A legend at the bottom right identifies element types by symbol: Fe (Ferro), Ga (Gallium), Fl (Fluor), Ra (Radioaktiv), and others.

**114: Flerovium**

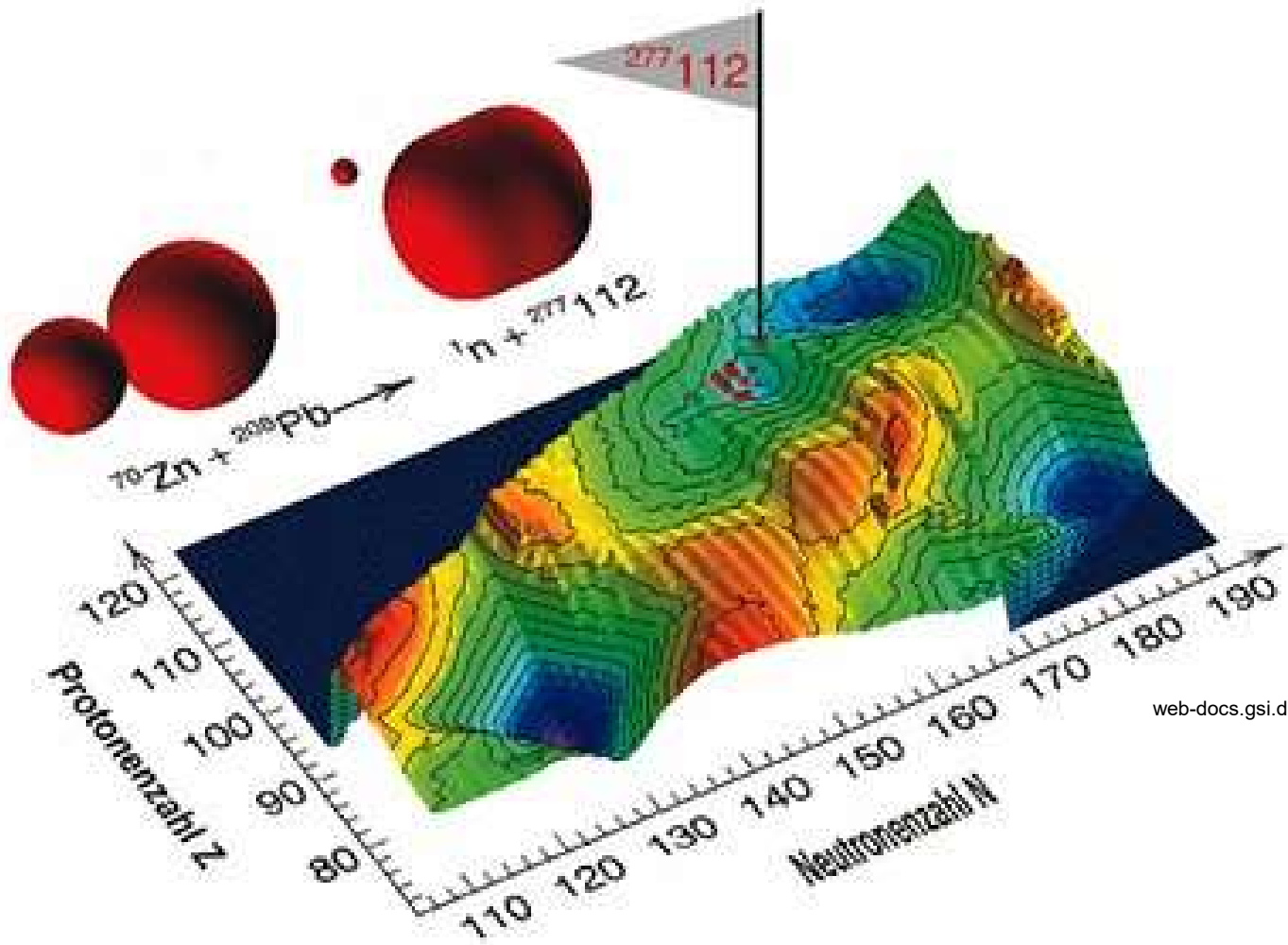
**116: Livermorium**

# Stabilitätsinsel

- Quantenmechanische Rechnungen ergaben, dass jenseits der Transuranelemente  $Z=114$  ein Gebiet mit einer großen Stabilität der Atomkerne existieren kann (Stabilitätsinsel)  
Atomkerne mit abgeschlossenen Neutronen- und Protonenschalen
- Magische Zahlen in diesem Gebiet: 114 für Protonen 184 für Neutronen
- Bisher noch nicht synthetisiert bzw. charakterisiert, noch in der Natur gefunden
- Erzeugung in Beschleunigern



# „Insel der Stabilität“



# Herstellung von Transuranelementen |

---

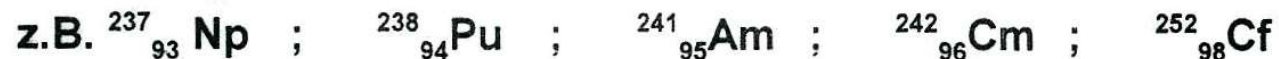
---

## - Im Kernreaktor

während des Abbrandes der Kernbrennstoffe im Reaktor entstehen nicht nur verschiedenste Spaltnuklide, sondern durch Neutroneneinfang des  $^{238}\text{U}$  und anschließend  $\beta^-$ -Prozesse höhere Transuranelemente



mit Reaktoren sind wägbare Mengen an TUE mit Ordnungszahlen  $Z < 100$  herstellbar



# Herstellung von Transuranelementen II

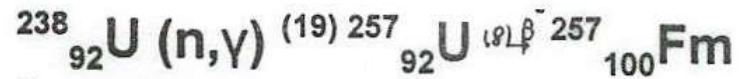
---

## - Synthese durch thermonukleare Reaktionen

Elemente Einsteinium (Z = 99) und Fermium (Z = 100) wurden in den Produkten der ersten thermonuklearen Explosion (1952 Bikini-Atoll) entdeckt

Annahme:

Aufnahme von bis zu 19 Neutronen durch  $^{238}_{92}\text{U}$ , anschließend mehrere  $\beta^-$ -Prozesse:



## - Herstellung mit Beschleunigern

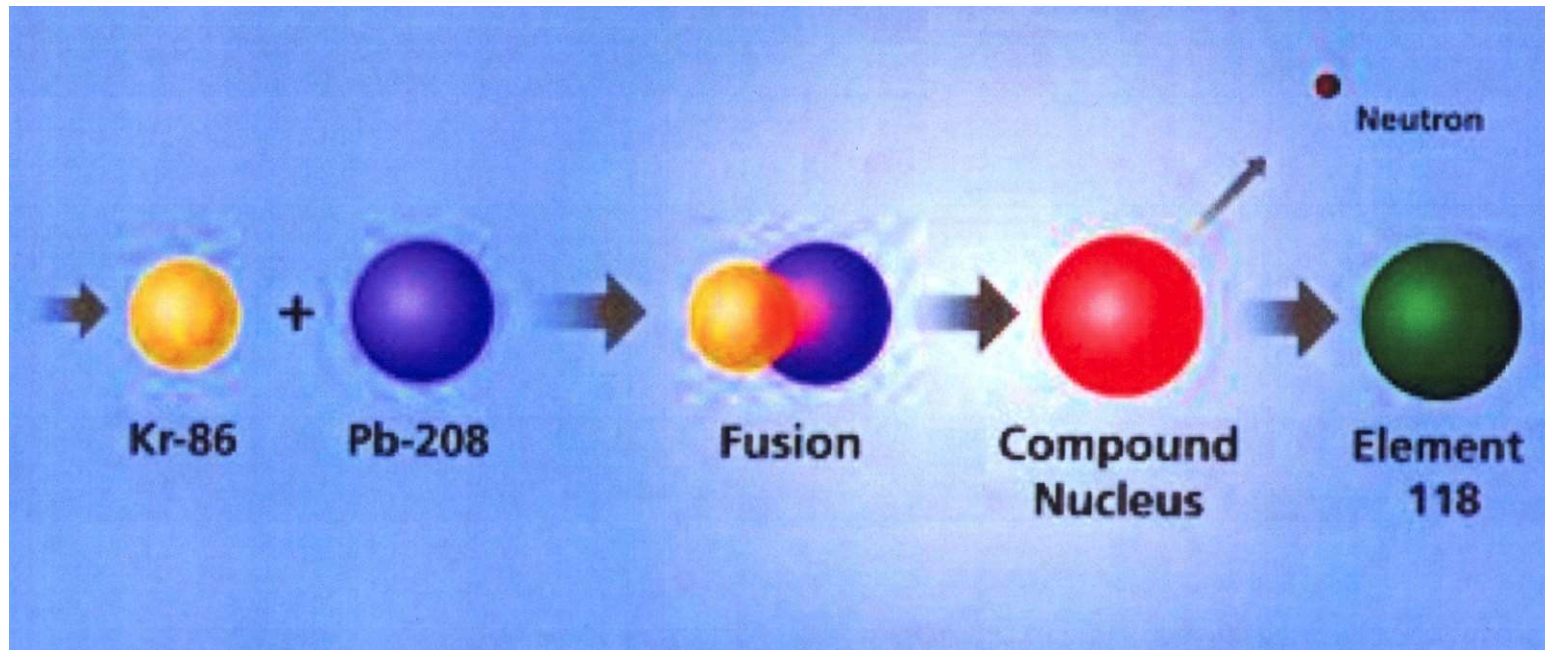
schwerste Elemente lassen sich nur durch Kernreaktion mit energiereichen schweren Ionen synthetisieren (siehe Tabelle)  
(J.T. Oganessian, P. Armbruster, S. Hoffmann, G. Münzenberg)

# Synthese Transuranelemente

Z	Element	Zahl der Nuklide	Nukleonenzahlen der Nuklide	Herstellung des zuerst gefundenen Nuklids	Jahr der Entdeckung
93	Neptunium Np	15	228 bis 242	$^{238}_{92}\text{U}(n, \gamma) \xrightarrow{\beta^-}$	1940
94	Plutonium Pu	15	232 bis 246	$^{238}_{92}\text{U}(d, 2n) \xrightarrow{\beta^-}$	1940
95	Americium Am	13	232 bis 247	$^{239}_{94}\text{Pu}(n, \gamma)(n, \gamma) \xrightarrow{\beta^-}$	1944
96	Curium Cm	14	238 bis 251	$^{239}_{94}\text{Pu}(\alpha, n)$	1944
97	Berkelium Bk	11	240 bis 251	$^{241}_{95}\text{Am}(\alpha, 2n)$	1949
98	Californium Cf	18	239 bis 256	$^{242}_{96}\text{Cm}(\alpha, n)$	1950
99	Einsteinium Es	14	243 bis 256	Thermonukleare Reaktion	1952
100	Fermium Fm	18	242 bis 259	Thermonukleare Reaktion	1952
101	Mendelevium Md	16	245 bis 260	$^{253}_{99}\text{Es}(\alpha, n)$	1955
102	Nobelium No	11	250 bis 259	$^{241}_{94}\text{Pu}(^{16}_8\text{O}, 5n)$	1957
103	Lawrencium Lr	10	253 bis 262	$^{249-252}_{98}\text{Cf} + ^{10,11}_5\text{B}$	1959
104		10	253 bis 262	$^{242}_{94}\text{Pu}(^{22}_{10}\text{Ne}, 4n)$	1964
105		8	255 bis 263	$^{243}_{94}\text{Pu}(^{22}_{10}\text{Ne}, 4n)$	1968
106		7	258 bis 266	$^{249}_{98}\text{Cf}(^{18}_8\text{O}, 4n)$	1974
107		3	261 bis 264	$^{209}_{83}\text{Bi}(^{54}_{24}\text{Cr}, n)$	1981
108		3	264 bis 267	$^{208}_{82}\text{Pb}(^{58}_{26}\text{Fe}, n)$	1984
109		2	266, 268	$^{209}_{83}\text{Bi}(^{58}_{26}\text{Fe}, n)$	1982
110		2	269, 271	$^{208}_{82}\text{Pb}(^{62}_{28}\text{Ni}, n)$	1994
111		1	272	$^{209}_{83}\text{Bi}(^{64}_{28}\text{Fe}, n)$	1994
112		1	277	$^{208}_{82}\text{Pb}(^{70}_{30}\text{Zn}, n)$	1996

# Synthese von „Schwersten Elementen“

- Mögliche Kernreaktion



# Seaborgium: Das Synthese-Experiment

---

## $^{248}\text{Cm} (^{22}\text{Ne}, 4n) ^{266}\text{Sg}$

- Halbwertszeit  $^{266}\text{Sg}$ :  $21 \left( {}^{+20}_{-12} \right) \text{ s}$
- Wirkungsquerschnitt:  $\sigma = 20 \dots 80 \text{ pb}$ ;  $E_{\text{O-18}} = 118\text{-}120 \text{ MeV ?}$
- Produktionsrate : ca. 1 Atom  $^{266}\text{Sg}$  pro Stunde
- Detektion des Sg: zeitlich korrelierte Zerfallsketten  
 $^{266}\text{Sg} \rightarrow ^{262}\text{Rf} \rightarrow \text{Spaltprodukte}$
- On-Line-Kontrolle: W-Ausbeute, Durchbruch von Fm und Dy durch die Chromatographiesäule

**Experiment an der Grenze des Machbaren!**

# Seaborgium: Experimentelle Ergebnisse

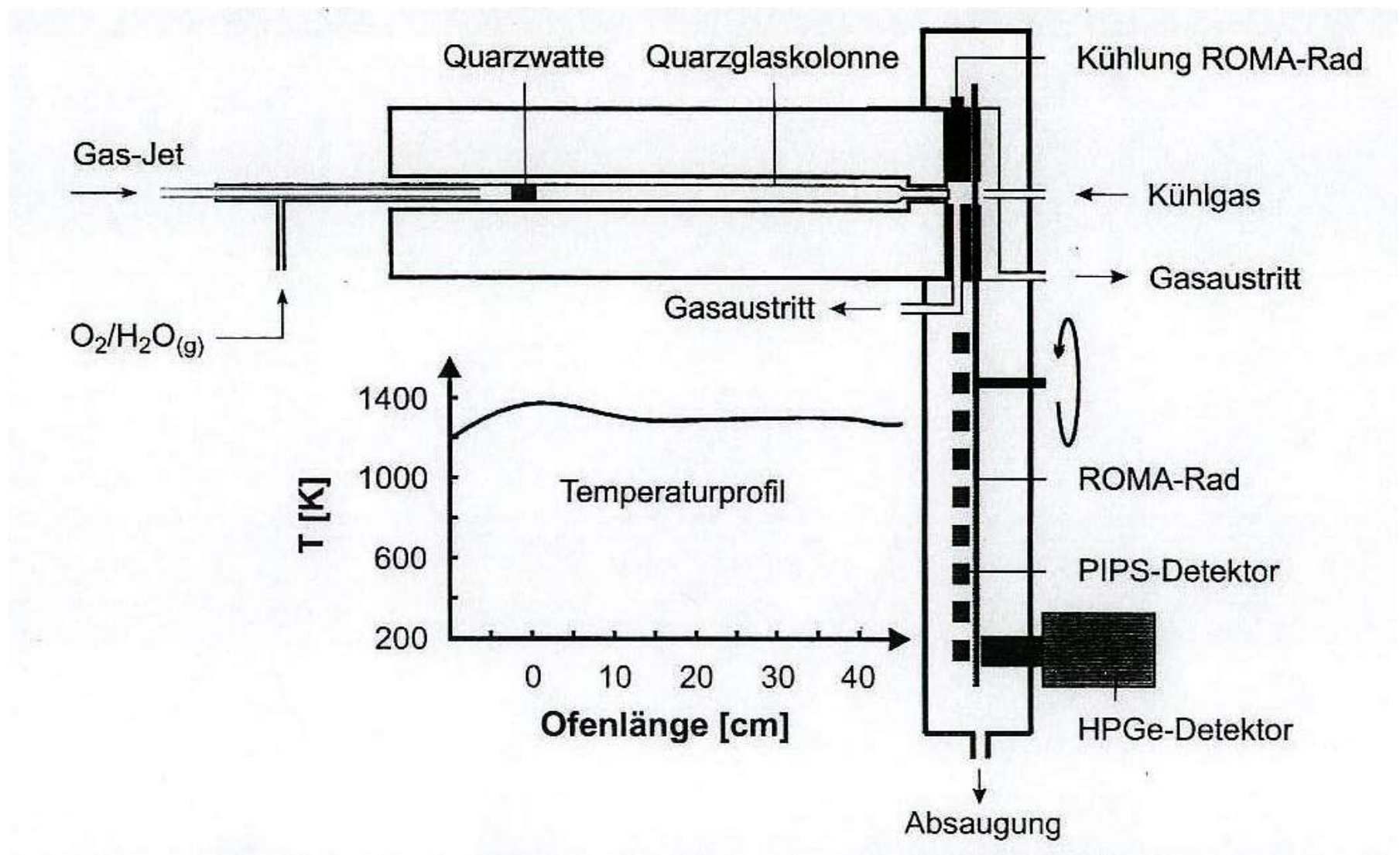
- **2 beobachtete  $^{266}\text{Sg}$ -Zerfallsketten; Irrtumswahrscheinlichkeit 5 %**

Ereignis	$E_{\alpha}$ MeV	Lebensdauer $^{266}\text{Sg}$ Sekunden	Lebensdauer $^{262}\text{Rf}$ Sekunden
1	8.66	84.9	7.0
2	8.70	4.8	3.7

- Bildung einer bei hohen Temperaturen in  $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$  flüchtigen Sg-Spezies:  
**Seaborgium ist ein typisches Element der 6. Gruppe des PSE**
- Quantitative Aussagen sind bei höheren Sg-Produktionsraten möglich
- Meilenstein auf dem Weg zu noch schwereren Elementen

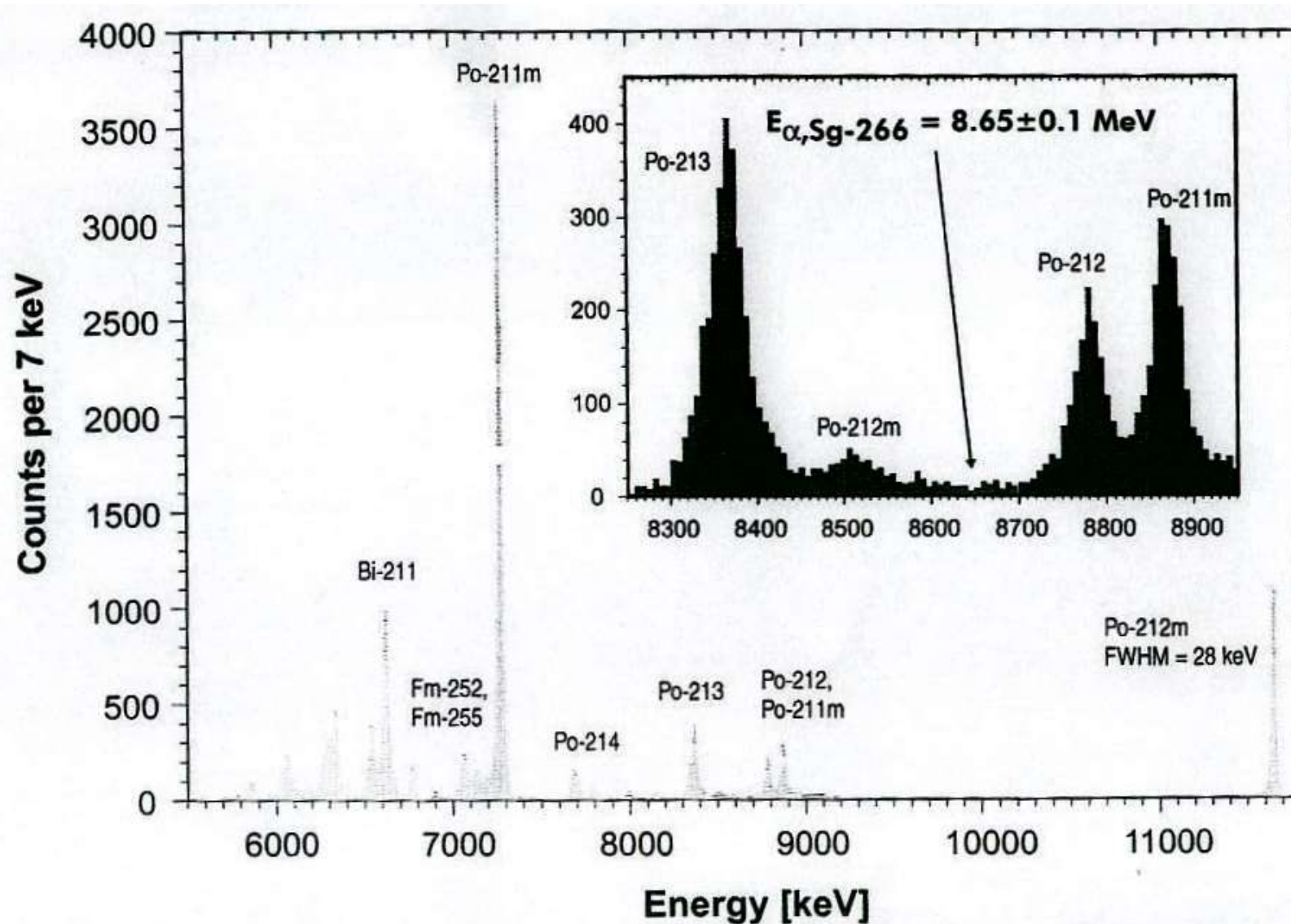
# Seaborgium: Oxidhydroxid-Chemie

## Isotherme On-Line-Gaschromatographie-Apparatur



# Seaborgium: Oxidhydroxid-Chemie

## Alpha-Spektrum von 43 h Strahlzeit, 10 Detektoren



# Charakterisierung des Seaborgiums: Wahl des chemischen Systems

---

---

## Oxychlorid-Chemie <sup>1</sup>

- Hohe Flüchtigkeit
- Geringe Selektivität
- Reversible Adsorption am Quarzglas (Chromatographiesäule)
- Hohe Ausbeute
- Hohe Trenngeschwindigkeit

## Oxidhydroxid-Chemie

- Geringe Flüchtigkeit
- Hohe Selektivität
- ? Oberflächenreaktion
- ? Ausbeute
- ? Trenngeschwindigkeit

---

<sup>1</sup> Nature (London) 388 (1997), 55

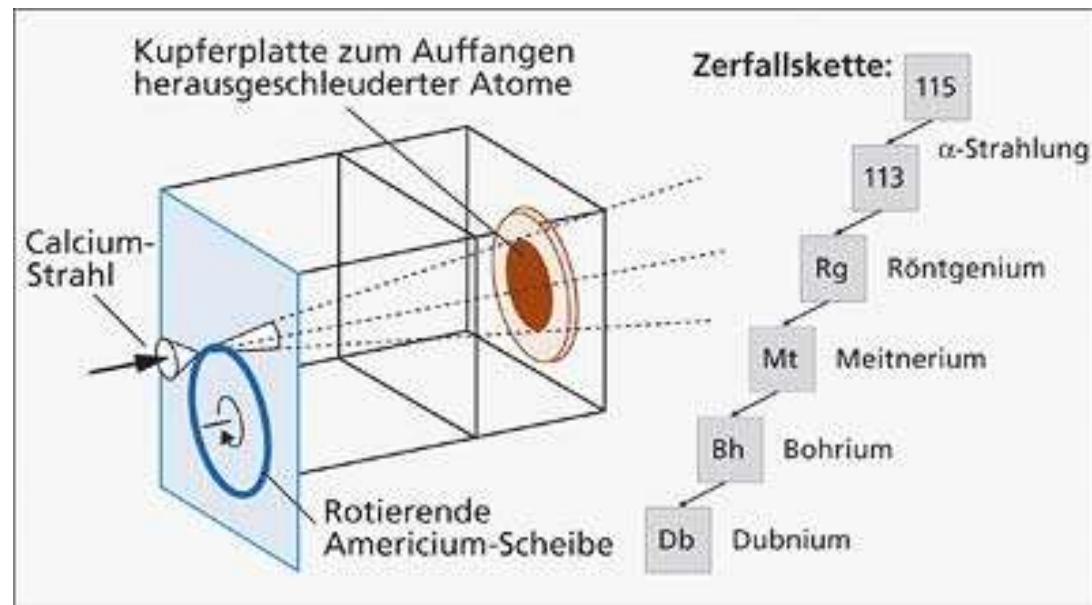
## ... die Synthese geht weiter

- Schwere Elemente zerfallen in der Regel über Kaskaden von elektrisch geladenen Helium-Atomen,
- Zerfallsketten (Kaskaden) nutzten deutsche, amerikanische, russische und Schweizer Wissenschaftler, um die bisher nur theoretisch angenommenen und noch namenlosen Elemente ab 112 experimentell nachzuweisen.

### Beispiel:

- zur Synthese von Atomen des Elements 115 bombardierten die Forscher eine rotierende Scheibe aus Americium, mit einem Calcium-Strahl. Dabei traten in seltenen Fällen Kernverschmelzungen auf:

### *Geburtsstunde des neuen Elements 115.*



# Observation of Superheavy Nuclei Produced in the Reaction of $^{86}\text{Kr}$ with $^{208}\text{Pb}$

V. Ninov,<sup>1</sup> K. E. Gregorich,<sup>1</sup> W. Loveland,<sup>2</sup> A. Ghiorso,<sup>1</sup> D. C. Hoffman,<sup>1,3</sup> D. M. Lee,<sup>1</sup> H. Nitsche,<sup>1,3</sup> W. J. Swiatecki,<sup>1</sup>  
U. W. Kirbach,<sup>1</sup> C. A. Laue,<sup>1</sup> J. L. Adams,<sup>1,3</sup> J. B. Patin,<sup>1,3</sup> D. A. Shaughnessy,<sup>1,3</sup> D. A. Strellis,<sup>1</sup> and P. A. Wilk<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>Nuclear Science Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720

<sup>2</sup>Department of Chemistry, Oregon State University, Corvallis, Oregon 97331

<sup>3</sup>Department of Chemistry, University of California, Berkeley, California 94720

(Received 27 May 1999)

Following a prediction by Smolańczuk [Phys. Rev. C **59**, 2634 (1999)], we searched for superheavy element formation in the bombardment of  $^{208}\text{Pb}$  with 449-MeV  $^{86}\text{Kr}$  ions. We have observed three decay chains, each consisting of an implanted heavy atom and six subsequent  $\alpha$  decays, correlated in time and position. In these decay chains, a rapid (ms) sequence of high energy  $\alpha$  particles ( $E_\alpha \geq 10$  MeV) indicates the decay of a new high-Z element. The observed chains are consistent with the formation of  $^{293}118$  and its decay by sequential  $\alpha$ -particle emission to  $^{289}116$ ,  $^{285}114$ ,  $^{281}112$ ,  $^{277}110$ ,  $^{273}\text{Hs}$  ( $Z = 108$ ) and  $^{269}\text{Sg}$  ( $Z = 106$ ). The production cross section is  $2.2^{+2.6}_{-0.8}$  pb.

PACS numbers: 25.70.Jj, 27.90.+b

*Fälschung von experimentellen Daten*

**Forschung und Verantwortung**

$^{293}_{118}\text{E}$

## Editorial Note: Observation of Superheavy Nuclei Produced in the Reaction of $^{86}\text{Kr}$ with $^{208}\text{Pb}$ [Phys. Rev. Lett. **83**, 1104 (1999)]

V. Ninov, K. E. Gregorich, W. Loveland, A. Ghiorso, D. C. Hoffman, D. M. Lee, H. Nitsche, W. J. Swiatecki,  
U. W. Kirbach, C. A. Laue, J. L. Adams, J. B. Patin, D. A. Shaughnessy, D. A. Strellis, and P. A. Wilk  
(Received 26 July 2001; published 1 July 2002)

DOI: 10.1103/PhysRevLett.89.039901

PACS numbers: 25.70.Jj, 27.90.+b, 99.10.+g

All but one of the authors of the original Letter have asked us to publish the following retraction:

In our Letter, we reported the synthesis of element 118 in the  $^{208}\text{Pb}(^{86}\text{Kr}, n)$  reaction based upon the observation of three decay chains, each consisting of an implanted heavy atom and six sequential high-energy alpha decays, correlated in time and position. Prompted by the absence of similar decay chains in subsequent experiments [1–4], we (along with independent experts) reanalyzed the primary data files from our 1999 experiments. Based on these reanalyses, we conclude that the three reported chains are not in the 1999 data.

We retract our published claim for the synthesis of element 118.

[1] S. Hofmann and G. Münzenberg, Rev. Mod. Phys. **72**, 733 (2000).

[2] K. Morimoto *et al.*, in *Tours Symposium on Nuclear Physics IV, Tours, 2000*, AIP Conf. Proc. No. 561 (AIP, New York, 2001), p. 354.

[3] C. Stodel *et al.*, in Ref. [2], p. 344.

[4] K. E. Gregorich *et al.* (to be published).

	I	II	<h1>Periodensystem der Elemente</h1>																III	IV	V	VI	VII	VIII	
1	H Wasserstoff																		B Bor	C Kohlenstoff	N Stickstoff	O Sauerstoff	F Fluor	He Helium	K
2	Li Lithium	Be Beryllium																							L
3	Na Natrium	Mg Magnesium	III a	IV a	V a	VI a	VII a	VIII a						I a	II a				Al Aluminium	Si Silicium	P Phosphor	S Schwefel	Cl Chlor	Ar Argon	M
4	K Kalium	Ca Calcium	Sc Scandium	Ti Titan	V Vanadium	Cr Chrom	Mn Mangan	Fe Eisen	Co Kobalt	Ni Nickel	Cu Kupfer	Zn Zink	Ga Gallium	Ge Germanium	As Arsen	Se Selen	Br Brom	Kr Krypton							N
5	Rb Rubidium	Sr Strontium	Y Yttrium	Zr Zirkonium	Nb Niob	Mo Molybdän	Tc Technetium	Ru Ruthenium	Rh Rhodium	Pd Palladium	Ag Silber	Cd Cadmium	In Indium	Sn Zinn	Sb Antimon	Te Tellur	I Iod	Xe Xenon							O
6	Cs Cäsium	Ba Barium	La Lanthan	Hf Hafnium	Ta Tantal	W Wolfram	Re Rhenium	Os Osmium	Ir Iridium	Pt Platin	Au Gold	Hg Quecksilber	Tl Thallium	Pb Blei	Bi Bismut	Po Polonium	At Astat	Rn Radon							P
7	Fr Francium	Ra Radium	Ac Actinium	Rf Rutherfordium	Db Dubnium	Sg Seaborgium	Bh Bohrium	Hs Hassium	Mt Meitnerium	Ds Darmstadtium	Rg Roentgenium	Cn Copernicum	Uut Ununtrium	Uuq Ununquadium	Uup Ununpentium	Uuh Ununhexium	Uus Ununseptium	Uuo Ununoctium							Q

Na ← Festes Element  
 H ← Gasförmiges Element  
 Br ← Flüssiges Element  
 Ra ← Radioaktives Element



HELMHOLTZ  
ZENTRUM DRESDEN  
ROSSENDORF