

„Új PET radioizotópok in-vivo génexpressziós vizsgálatokhoz”

Szakmai beszámoló az OTKA kutatás keretében végzett munkákról és az elért eredményekről
(2006-2010)

1. Bevezetés

Az utóbbi évek egyik ígéretes kutatási iránya a pozitron emissziós tomográfia (PET) alkalmazása a „génexpresszió” tanulmányozására. A vizsgálatok célja az, hogy olyan új radioaktív izotópokkal nyomjelzett szerves vegyületeket („radiofarmakonokat”) állítsanak elő, melyek a megfelelő mRNS-hez, illetve proteinekhez kötődve lehetővé teszik a gének élő szervezetben belüli („in-vivo”) megjelenítését. Ezen folyamatok ismerete alapvető fontosságú a rákos elváltozások kezelésére kidolgozandó génterápiás módszerek kifejlesztésére, illetve azok hatásosságának ellenőrzésére.

Az irodalmi elővizsgálatok (elsősorban állatkísérletek) során kiderült, hogy a megfelelő vegyületek (antisense [vagy ellenirányú] oligonukleotidok) jelzésére a ^{18}F -on kívül más radiohalogének (pl.: ^{76}Br , ^{124}I) is jól használhatók. A ^{76}Br ($T_{1/2}=16.2$ h, $\beta^+=75.5\%$) vagy a ^{124}I ($T_{1/2}=4.18$ d, $\beta^+=22\%$) alkalmazása esetén, a hosszabb ideig tartó folyamatok is jól nyomon követhetők a sejtekben a PET technika segítségével. Néhány kutatócsoport eredményei alapján az is nyilvánvalóvá vált, hogy a ^{68}Ga ($T_{1/2}=68$ min, $\beta^+=89\%$) is eredményesen használható az oligonukleotidok jelzésére, és így ez is kiválthatja a ^{18}F radioizotópot. Habár napjainkig számos szerző vizsgálta a fenti radioizotópok előállításának lehetőségét kis- és középenergiás ciklotronokkal, a javasolt magreakciók és elválasztási módszerek nagy többsége nem bizonyult gyakorlati célokra megfelelőnek.

Az általunk javasolt termelési módok egyszerűbb céltárgy anyagokat (natúrális izotóp összetétel, illetve olcsóbb dúsított anyagok) alkalmaznak, és lényegesen egyszerűbb kémiai szeparációs módszerek használatát is lehetővé teszik.

A kutatási tervben szereplő vizsgálatokat, azok ütemezésnek sorrendjében, sikeresen elvégeztük. A kapott eredmények igazolták a célkitűzéseinket, és megteremtik a fenti izotópok rutinszerű alkalmazásának lehetőségét.

2. Az elért eredmények

2.1. A ^{68}Ga radioizotóp előállítása $\text{Cu}+\alpha$ magreakcióval

A ^{68}Ga radioizotópot széles körben alkalmazzák a nukleáris medicinában (pl. diagnosztikai vizsgálatokhoz használt peptidek jelzésére, PET berendezések hitelesítésére stb.). Rövid felezési ideje miatt rutin termelésére egy ún. „generátoros” eljárást fejlesztettek ki. ($^{68}\text{Ge}(T_{1/2}=270.8$ d) $\rightarrow^{68}\text{Ga}$). Az anyaelem termelése elég költséges, ezért a generátor is meglehetősen drága, és rendelését is előre szükséges ütemeztetni. Az utóbbi években jelentősen megnőtt az igény a generátor iránt, így a beszerezhetősége is nehezebb lett. A génexpressziós vizsgálatok viszonylag kis aktivitásigénye és gyors ismételtetősége miatt vált tehát szükségessé olyan magreakciók tanulmányozása, melyekkel kis- és középenergiás ciklotronok mellett is megvalósítható a ^{68}Ga

helyi (házi) gyors és olcsó előállíthatósága. Pályázatunkban mi a rézen és a cinken lejátszódó alfa részecskék, illetve protonok által kiváltott magreakciókkal történő termelési körülmények kidolgozását kívántuk megvalósítani.

A ^{68}Ga radioizotóp termelésére a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ magreakciót választottuk. A réz fizikai és kémiai tulajdonságai alapján ideális céltárgy-anyag, mivel könnyen megmunkálható, galvanizálható, és jó hővezető képessége miatt alkalmas a nagy intenzitású besugárzások elviselésére is. Előnye továbbá az is, hogy mind a természetes réz (^{63}Cu : 69.17%, ^{65}Cu : 30.83%), mind a ^{65}Cu -ban dúsított változatai is könnyen beszerezhetőek kereskedelmi forrásokból. Vizsgálataink során, a hatás keresztmetszet mérésekhez, és a termelési elő kísérletekhez mi is vásároltuk a természetes izotóp összetételű céltárgyakat.

A réz céltárgy optimális besugárzási körülményeinek meghatározása érdekében megmértük az $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ magreakció gerjesztési függvényét a reakció küszöbenergiájától ($E_{\text{thr}} = 6.18 \text{ MeV}$) a 40-ig terjedő energia tartományban. Ugyancsak vizsgáltuk a ^{68}Ga termelése esetén szennyező radioizotópoknak számító ^{66}Ga ($T_{1/2} = 9.49 \text{ h}$) és ^{67}Ga ($T_{1/2} = 3.2612 \text{ d}$) nuklidokat előállító $^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{67}\text{Ga}$ és $^{63}\text{Cu}(\alpha, n)^{66}\text{Ga}$ magreakciók hatás keresztmetszet adatait is. A hatás keresztmetszet méréseket az ún. „szendvicsfólia” aktiválási technikával végeztük. Céltárgyként vékony ($\sim 9.5 \mu\text{m}$) $^{\text{nat}}\text{Cu}$ fémfóliákat használtunk. A fólia sorozatokba szokásos módon monitor- és energiacsökkentő fóliákat is helyeztünk. Erre a célra $30 \mu\text{m}$ vastag $^{\text{nat}}\text{Ti}$ fóliákat alkalmaztunk. A besugárzó nyalábok energia- és intenzitás monitorizálására a NAÜ (Nemzetközi Atomenergia Ügynökség) által javasolt $^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, n)^{66}\text{Ga}$, $^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{67}\text{Ga}$ és $^{\text{nat}}\text{Ti}(\alpha, n)^{51}\text{Cr}$ magreakciókat használtuk. A méréseket a debreceni ATOMKI és a Japán NIRS (National Institute of Radiological Sciences) intézetek ciklotron laboratóriumaiban végeztük. Két fóliasorozat került besugárzásra (10, illetve 7 réz céltárggyal), melyek aktivitását kémiai szeparáció nélkül mértük meg az adott laboratóriumban.

Vizsgálataink alapján - 17 adatpontra illesztve - a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ magreakció gerjesztési függvénye az $E_{\alpha} = 16.4 \text{ MeV}$ bombázó energiánál éri el a maximumát ($\sigma_{\text{max}} = 878 \text{ mbarn}$). Eredményeinket összevetettük az irodalomban rendelkezésre álló adatokkal, majd elvégeztük az adatsorok kompilációját és evaluációját, melynek eredményeként elkészítettük a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ magreakció megbízható hatás keresztmetszet adatbázisát. A $^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{67}\text{Ga}$ és a $^{63}\text{Cu}(\alpha, n)^{66}\text{Ga}$ magreakciókra kapott hatás keresztmetszet adatok jó egyezést mutattak a NAÜ által monitornak „ajánlottak” adataival a vizsgált energia tartományokban. Ezek az egyezések független módon megerősítik a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ magreakcióra vonatkozó jelen vizsgálatok megbízhatóságát és pontosságát.

Az általunk illesztett $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ gerjesztési függvény, valamint a $^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{67}\text{Ga}$ és a $^{63}\text{Cu}(\alpha, n)^{66}\text{Ga}$ magreakciókra rendelkezésre álló NAÜ adatok alapján vastag-céltárgy hozamszámolásokat végeztünk a 20 MeV alatti energia tartományban. Ugyancsak meghatároztuk a besugárzás befejezésekor (EOB: End Of Bombardment) várható ^{66}Ga és ^{67}Ga szennyező aktivitások mennyiségét is a céltárgyban lévő ^{65}Cu arányának, és a bombázó alfa részecskék energiájának függvényében. Ezek alapján a ^{68}Ga „tisztá” (^{66}Ga és ^{67}Ga radioizotóp-mentes) termelésének „energia ablakára” (energia tartománya) az $E_{\alpha} = 14.9 \rightarrow 6.18 \text{ MeV}$ adódik. A tisztaság további feltétele, hogy a céltárgy-anyag ^{65}Cu -ban dúsított (100%) legyen. Ha ilyen céltárgyat aktiválunk a ^{68}Ga két felezési idejéig (2.25 h) akkor az elérhető EOB aktivitás: $6.7 \text{ mCi}/\mu\text{A}$. Figyelembe véve a szokásosan elérhető nyalábintenzitásokat ($\sim 10\text{-}50 \mu\text{A}$), ezzel a módszerrel elegendő mennyiségű aktivitás állítható elő gyakorlati célokra. A 100%-os ^{65}Cu céltárgy magas beszerzési ára miatt meghatároztuk azt a minimálisan szükséges dúsítási szintet (és energia ablakot), amellyel a szennyezési szintek a vizsgálatok által még tolerálható értékeken belül maradnak. A legalább 98%-os dúsítású ^{65}Cu céltárgy az $E_{\alpha} = 18.0 \rightarrow 6.18 \text{ MeV}$ energia

tartományban mintegy 14 mCi/ μ A EOB hozamot képes biztosítani, miközben a szennyezések még alacsony szinten maradnak (^{65}Ga (0.4%), ^{66}Ga (0.15%) ^{67}Ga (0.15%)). Mivel a kb. 1-2%-os teljes szennyezés még elfogadható egy szokásos PET vizsgálat végén, így a kémiai szeparációra, a nyomjelzésre és a PET vizsgálatra az EOB-t követő kb. 8-10 h időtartam áll rendelkezésre.

A gyakorlati termelési körülmények vizsgálatára 1 cm átmérőjű vékony (0.3 mm) réz korongokat sugároztunk be (5 kísérlet) az ATOMKI ciklotronjának függőleges izotóptermelő berendezésén. A korongokat a besugárzás alatt ioncserélt vízzel hűtöttük, a bennük termelődött hő elvezetése céljából. Az alkalmazott maximális nyalábáram 15 μ A volt, míg a céltárgy felületét elérő alfa részecskéket 18 MeV-ra gyorsítottuk fel. A tipikus besugárzási idő 2.25 h volt. A mért aktivitások jó egyezést mutattak a számolások alapján várható értékekkel.

A gallium radioizotópok besugárzott réz céltárgyból való kinyerésére automatizálható eljárást fejlesztettünk ki. A ^{68}Ga radioizotóp réztől való gyors, és nagy hatásfokú elválasztására egy általunk korábban kidolgozott (és a ^{67}Ga rutintermelésére alkalmazott) oszlop kromatográfiás módszert fejlesztettünk tovább. (Kovács Z. et al.: Preparation of $^{67}\text{GaCl}_3$ and Na^{123}I intermediars for human diagnostic purposes. *European J. Nuclear Medicine* **26**(1987)197). A besugárzások után a céltárgyakat azonnal királyvízben feloldottuk, majd az oldatot beszárítottuk. Ezt követően a maradékot tömény sósavban még kétszer feloldottuk és bepároltuk, hogy klorid formába vigyük a rezet (és a galliumot). A szeparációra Dowex 50 kation cserélő gyantát használtunk, melyet előzőleg (cc. HCl-val) előkezeltünk. Az oszlopra 5 ml tömény sósavban oldva vittük fel a szeparálandó anyagot. Az oszlop belső átmérője 6 mm, míg hossza 8 cm volt. A réz lemosása újabb 5 ml tömény sósavval történt. Eredményeink alapján a réz teljesen lemosódott az oszlopról, miközben a ^{68}Ga nagy része ($95\pm 3\%$) megkötődött. (A rezet tartalmazó oldatból lehet dúsított anyag esetén az újabb céltárgyakat galvanizálni.) A következő lépésben a radio-galliumot 10 ml 4M HCl-val eluáltuk az oszlopról, majd az oldatot beszárítottuk. Az így kapott $^{68}\text{GaCl}_3$ szolgál kiindulási anyagként a különböző jelzési folyamatokhoz. A folyamat teljes időtartalma átlagosan 1 h körül alakult. A bomlásra korrigált hatásfok $90\pm 5\%$ -nak adódott. Eredményeink alapján a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ magreakcióra alapuló termelési eljárás alkalmas a ^{68}Ga közvetlen termelésére olyan laboratóriumokban, melyek ciklotronja legalább 18 MeV-es alfa részecskék gyorsítására képes. Előnye a módszernek az, hogy viszonylag kis mennyiségű (50-100 mg) és relatíve olcsó dúsított anyagmennyiséget használ, ezáltal is csökkentve a termelés költségeit.

Eredményeinkről eddig egy konferencián számoltunk be [5]. (Lásd a kutatással kapcsolatos eredmények közleményjegyzékét az OTKA honlapon. Az eredményeket bemutató cikket ez év folyamán küldjük be a *Radiochimica Acta* folyóiratba.

2.2. A ^{68}Ga radioizotóp termelése $\text{Zn}+p$ magreakcióval

Kutatási programunkban a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ mellett a $^{68}\text{Zn}(p, n)^{68}\text{Ga}$ magreakció hatás-keresztmetszet és hozam-adatainak részletes vizsgálatát is terveztük, hogy meghatározhassuk a fenti reakcióval történő termelés optimális paramétereit. A ^{68}Zn -ban dúsított cink széles körben használt céltárgy-alapanyag a ^{67}Ga (és utóbbi időben a ^{67}Cu) radioizotóp rutin termelésére. A cinkből történő céltárgy készítése, a gallium elválasztása és a besugárzott cink termelés utáni visszanyerése jól ismert az irodalomban, és a mi is rendelkezünk ilyen irányú gyakorlati tapasztalatokkal. Az eddigi eredményeink alapján a gallium cinkből történő elválasztása is könnyen automatizálható és rövid idő (< 1 h) alatt megvalósítható.

A cink céltárgy optimális besugárzási körülményeinek meghatározása érdekében nem volt szükséges olyan részletességű hatáskeresztmetszet mérésekre, mint a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ magreakció esetében. Ennek oka az volt, hogy a $^{68}\text{Zn}(p, n)^{68}\text{Ga}$ magreakcióra már rendelkezésre áll egy

megbízható adatbázis (Szelecsényi F. *et al.*: Evaluated cross section and thick target yield data bases of Zn+p processes for practical applications. *Appl. Radiat. Isot.* **49**(1998)1005). Ezen munkánkat követően pedig csak egyetlen kísérleti munka jelent meg az irodalomban. Sajnálatos módon, azonban a szerzők adatai kb. 1 MeV-es energiacsúszást mutatnak az általunk javasolt görbéhez képest. A hozamszámolások előtt ezért szükségessé vált, hogy legalább néhány ponton ellenőrizzük a korábbi adatok használhatóságát.

A gerjesztési függvény ellenőrzésére galvanizálással készítettünk ^{68}Zn (>98.9%) vékony céltárgyakat (6 db), melyek átlagos vastagsága 25 μm volt. Hátlapként kereskedelmi forrásból beszerzett nagy tisztaságú, $^{\text{nat}}\text{Ni}$ (vastagság: 10 μm) fóliát használtunk. A fóliák és a termelési kísérletekhez használt céltárgyak galvanizálásra egy korábban általunk kidolgozott módszert fejlesztettünk tovább. (Tárkányi F., Szelecsényi F., Kovács Z., Sudár S.: Excitation functions of proton induced nuclear reactions on enriched ^{66}Zn , ^{67}Zn and ^{68}Zn . Production of ^{67}Ga and ^{66}Ga . *Radiochimica Acta* **50**(1990)19.)

A mérésre használt kísérleti módszerünk nagyban hasonló volt a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ reakció vizsgálatánál alkalmazottnál. A lényegesebb különbségek az alábbiak voltak: egy kísérlet; besugárzási energia: 30 MeV; NIRS ciklotron; energiacsökkentő fólia: $^{\text{nat}}\text{Cu}$, $^{\text{nat}}\text{Au}$; monitor reakciók (NAÜ): $^{\text{nat}}\text{Ni}(p, x)^{57}\text{Ni}$ $^{\text{nat}}\text{Cu}(p, x)^{62}\text{Zn}$, valamint $^{68}\text{Zn}(p, 2n)^{67}\text{Ga}$, $^{\text{nat}}\text{Au}(p, 2n)^{197\text{m}}\text{Hg}$. A $^{68}\text{Zn}(p, n)^{68}\text{Ga}$ reakció alkalmazása során a $^{68}\text{Zn}(p, 2n)^{67}\text{Ga}$ és a $^{68}\text{Zn}(p, 3n)^{66}\text{Ga}$ folyamatok állítanak elő szennyező radioizotópokat a 30 MeV alatti energia tartományban. Vizsgálataink során ezért a fenti reakciók gerjesztési függvényeit is mértük. Eredményeink teljes mértékben megerősítették az ajánlott adatok megbízhatóságát mind a $^{68}\text{Zn}(p, n)^{68}\text{Ga}$ (ARI **49**(1998)1005), mind a $^{68}\text{Zn}(p, 2n)^{67}\text{Ga}$ (NAÜ) magreakciók esetében. Az utóbbi egyezés független módon is megerősíti a (p, n) folyamatra vonatkozó jelen vizsgálataink megbízhatóságát és pontosságát.

Az általunk ellenőrzött $^{68}\text{Zn}(p, xn)^{66,67,68}\text{Ga}$ gerjesztési függvények alapján vastag-céltárgy hozamszámolásokat végeztünk a 20 MeV-ig terjedő energia tartományban. Ugyancsak meghatároztuk a besugárzás befejezésekor várható ^{67}Ga szennyező aktivitás mennyiségét is a céltárgyban. Ezek alapján a ^{68}Ga radioizotóp ^{67}Ga -mentes termelésének energia tartományára az $E_p = 12.16 \rightarrow 3.76$ MeV adódik. Ennél a reakciónál is szükséges az, hogy a céltárgy-anyag ^{68}Zn -ban dúsított (100%) legyen. Ha ilyen céltárgyat aktiválunk ($T = 2.25$ h), akkor az elérhető EOB aktivitás közel 186 mCi/ μA lesz. Ez a hozam szignifikánsan nagyobb a $^{65}\text{Cu}(\alpha, n)^{68}\text{Ga}$ módszerrel termelhetőnél, ezért kisebb nyalábintenzitások (~1-10 μA) mellett is jól alkalmazható gyakorlati célokra. A 100%-os ^{68}Zn céltárgy magas beszerzési ára miatt meghatároztuk azt a minimálisan szükséges dúsítási szintet (és energia ablakot), amellyel a $^{66,67}\text{Ga}$ szennyezési szintek a vizsgálatok által még tolerálható értékeken belül maradnak. A dúsítási szintnél figyelemmel kell lenni a ^{66}Zn és a ^{67}Zn tényleges mennyiségére is, mivel ezeken a magokon is olyan reakciók mennek végbe, melyek szennyező gallium izotópokat eredményeznek ($^{66}\text{Zn}(p, n)^{66}\text{Ga}$ ($E_{\text{thr}} = 6.05$ MeV), $^{67}\text{Zn}(p, n)^{67}\text{Ga}$ ($E_{\text{thr}} = 1.81$ MeV)). Szerencsére, az említett magreakciók hatás-keresztmetszeteire is ajánlott adatok állnak rendelkezésre, így ezek hozamadatai is kellő pontossággal meghatározhatóak. Számolhattuk tehát a besugárzás befejezésekor várható teljes ^{66}Ga és ^{67}Ga szennyező aktivitások mennyiségét is a céltárgyban lévő $^{66,67,68}\text{Zn}$ arányának, és a bombázó protonok energiájának függvényében. A legalább 90%-os dúsítású ^{68}Zn céltárgy ($^{66}\text{Zn} < 1\%$, $^{67}\text{Zn} < 1\%$) a 12 MeV-ig terjedő energia tartományban mintegy 150 mCi/ μA EOB aktivitást képes biztosítani, miközben az egyetlen szennyező a ^{66}Ga lesz. A várható $^{66}\text{Ga}/^{68}\text{Ga}$ arány pedig kisebb lesz, mint 0.15%. Hasonlóan a Cu+ α módszernél említettekhez, a kémiai szeparációra, a nyomjelzésre és a PET vizsgálatra az EOB-t követően itt is kb. 8-10 h időtartam áll rendelkezésre.

A gyakorlati termelési körülmények vizsgálatára és a kémiai szeparációra a rézen alapuló termeléshez hasonló módszert használtuk. Céltárgyként nikkelezett réz hátlapra galvanizált

naturális cinket (átmérő: 1 cm, tömeg 150 mg) sugaraztunk be (5 kísérlet) intézetünk függőleges izotóptermelő nyalábvégén. A korongokat a besugárzás alatt itt is ioncserélt vízzel hűtöttük. Az aktiválás 12 MeV-es protonokkal történt, míg a max. nyaláb-áram 15 μ A volt ($T_{\text{besugárzás}}=2.25$ h).

A gallium radioizotópok besugárzott cink céltárgyból való kinyerésére pontosan ugyanazt az eljárást használtuk, mint a gallium réztől való elválasztásakor. (A Dowex 50 gyantán az oszlop kromatográfiás elválasztás sósavas közegben hasonló módon történik, mivel a Zn^{2+} és a Cu^{2+} ionok megoszlási koefficiense hasonló.) A bomlásra korrigált elválasztási hatások 94 \pm 3%-nak adódtak. Eredményeink alapján a $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ magreakcióra alapuló termelési eljárás is alkalmas a ^{68}Ga közvetlen termelésére olyan laboratóriumokban, melyek ciklotronja legalább 12 MeV-es protonok gyorsítására képes. Eredményeinkről eddig egy konferencián számoltunk be [5]. Lásd a $\text{Cu}+\alpha$ termelésnél említett információkat.

2.3. A ^{76}Br radioizotóp előállítása $^{78,80}\text{Se}+p$ magreakciókkal

A ^{76}Br ($T_{1/2}=16$ h) radioizotóp mind a gyors metabolikus folyamatok PET-vel történő tanulmányozásában, mind a terápia egyes területein már bizonyította hasznosságát. Termelésére idáig dúsított izotóp összetételű (és ezért igen drága) szelén ($^{76,77}\text{Se}$) céltárgyakon végbemenő (p,n), illetve (p,2n) reakciókat javasoltak. Kutatási programunkban mi a $^{78}\text{Se}(p,3n)^{76}\text{Br}$ és a $^{80}\text{Se}(p,5n)^{76}\text{Br}$ magreakciókat vizsgáltuk termelési célokra, mivel az utóbbi céltárgy-anyagok jóval olcsóbbak. (Természetes izotóp-összetétel: $^{76}\text{Se}(9.2\%)$, $^{77}\text{Se}(7.6\%)$, $^{78}\text{Se}(23.5\%)$, $^{80}\text{Se}(49.8\%)$). A különböző dúsítási fokú szelén céltárgyak (^{78}Se : 98.58%; ^{80}Se : 99.90%) optimális besugárzási körülményeinek meghatározása érdekében részletes hatáskeresztmetszet méréseket végeztünk az $E_p \leq 100$ MeV energia tartományban. Ugyancsak vizsgáltuk - ^{nat}Se céltárgyak felhasználásával is - a ^{76}Br termelése esetén szennyezőnek számító egyéb Br radioizotópokat előállító magreakciók hatáskeresztmetszet adatait is. (Különös tekintettel a ^{77}Br ($T_{1/2}=57.04$ h) termelő $^{78}\text{Se}(p,2n)^{77}\text{Br}$ és $^{80}\text{Se}(p,4n)^{77}\text{Br}$ magfolyamatokat).

A hatáskeresztmetszet mérésekhez itt is a szendvicsfólia aktiválási technikát alkalmaztuk. A dúsított anyagokból szedimentációs módszerrel készítettünk vékony céltárgyakat (8 db ^{78}Se , 6 db ^{80}Se ; vastagság: (~9.5 μm)) 0.1 mm vastag Al hátlapokra. Az anyagok besugárzás, illetve mérés közbeni esetleges sérülésének („leporlásának”) megakadályozására a felületeket 0.01 mm vastagságú alumíniummal borítottuk. Naturális céltárgyainkat (10 db) vákuumpárologtatással állítottuk elő 100 μm vastag Al hátlapra. A kapott rétegek átlagos vastagága 2 μm volt. A fólia sorozatokba szokásos módon monitor- és energiacsökkentő fóliákat is helyeztünk. Erre a célra különböző vastagságú ^{nat}Ni , ^{nat}Cu , ^{nat}Al és ^{nat}Au fóliákat alkalmaztunk. A besugárzó nyalábok energia- és intenzitás monitorizálására a NAÜ által javasolt $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{57}\text{Ni}$, $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{62,63,65}\text{Zn}$, $^{nat}\text{Ti}(p,xn)^{48}\text{V}$ és $^{27}\text{Al}(p,x)^{22}\text{Na}$, valamint a $^{nat}\text{Au}(p,xn)^{195-197\text{m}}\text{Hg}$ magreakciókat használtuk. A besugárzásokat a Dél-afrikai iThemba Labs, a NIRS és a Jülich-i (Németország) kutatóintézet ciklotron gyorsítóival végeztük. A fóliákat többször is aktiváltuk, úgy, hogy a vizsgált energia tartományok legalább 2-3 MeV átfedéssel rendelkezzenek.

Vizsgálataink alapján mindkét termelésre javasolt magfolyamat egy fő maximumot mutat a vizsgált energia tartományban ($^{78}\text{Se}(p,3n)^{76}\text{Br}$: 27 adatpont, $\sigma_{\text{max}}=300$ mb, $E_p=35$ MeV; $^{80}\text{Se}(p,5n)^{76}\text{Br}$: 17 adatpont, $\sigma_{\text{max}}=62$ mb, $E_p=61$ MeV). Az irodalomban mi közöltünk először hatáskeresztmetszet adatokat a $^{80}\text{Se}(p,5n)^{76}\text{Br}$ magreakcióra, annak küszöbenergiájától 100 MeV-ig, valamint 30 MeV felett a $^{78}\text{Se}(p,3n)^{76}\text{Br}$ folyamatra. A szennyező reakciók közül a $^{80}\text{Se}(p,4n)^{77}\text{Br}$ magfolyamatra sem álltak rendelkezésre mérési adatok a mi vizsgálatainkat megelőzően. A $^{78}\text{Se}(p,2n)^{77}\text{Br}$ magreakció hatáskeresztmetszet adatainak maximuma az $E_p=21$ MeV energiánál található ($\sigma_{\text{max}}=740$ mb), míg a $^{80}\text{Se}(p,4n)^{77}\text{Br}$ folyamat magasabb energia

értéknél érte el maximumát ($E_p=44$ MeV, $\sigma_{\max}=220$ mb). Mindkét termelésre javasolt reakciónál elméleti számolásokat is végeztünk (ALICE-IPPE). A számolások jó egyezést mutattak a kísérleti adatainkkal.

Az illesztett gerjesztési függvények alapján vastag-céltárgy hozamszámolásokat végeztünk 70 MeV-ig. Ezek alapján a ^{76}Br termelésének optimális energia tartományára a (p,3n) reakció esetén az $E_p=66\rightarrow30$ MeV adódott. Az elérhető hozam pedig 25 mCi/ μAh körül alakul. A (p,5n) magfolyamat is jó hozammal termeli a ^{76}Br -t ($E_p=86\rightarrow34$ MeV, hozam: 14.6 mCi/ μAh .) Mindkét reakció viszonylag nagy hozammal állítja elő a ^{77}Br szennyezőt. Megfelelő energia ablak és besugárzási idő megválasztásával azonban a $^{78}\text{Se}(p,3n)^{76}\text{Br}$ esetén a ^{77}Br EOB szennyezés 2-3%-ra csökkenthető, így ez utóbbi reakció jól alkalmazható gyakorlati célokra.

A bróm radioizotópok szeléntől való elválasztására száraz desztillációs eljárást használtunk. A módszer egy a korábban általunk kifejlesztett eljárás továbbfejlesztésén alapul. (Kovács Z. *et al.*: Production of ^{75}Br via the $^{76}\text{Se}(p,2n)^{75}\text{Br}$ reaction at a compact cyclotron. *Appl. Radiat. Isotop.* **36**(1985)635). Kör alakú (átmérő: 1 cm) vastag alumínium hátlapra 250 °C hőmérsékleten olvasztottuk rá a por formájú (300 mg) $^{\text{nat}}\text{Se}$ -t. A hővezetési problémák miatt csak alacsony intenzitással (<10 μA) sugaraztuk be a céltárgyakat (5 kísérlet) mintegy 10 h-ig ($E_p=18$ MeV). Az aktiválást követően egy kis holt térfogatú (~10 cm^3) üvegből készült szeparáló kemencébe helyeztük a céltárgyat. Folyamatosan Ar gázt áramoltattunk át a rendszeren (75 ml/min), melynek a céltárgyat tartalmazó részét végig 300 °C hőmérsékleten tartottunk. Méréseink szerint a szelén 2-3%-a is elpárolgott a folyamat alatt, de ez a készülék hidegebb, 150–100 °C-os részén kondenzálódott. A brómot vivő gázt egy 2ml 0.01 M NaOH-ot tartalmazó csapdán vezettünk át ahol a Br megkötődött. A kapott Na^{76}Br a kiinduló alapanyag a további jelzésekhez. A szeparáció alatt ($T_{\text{szep.}}=0.5$ h) a bomláskorrigált hozam elérte 85 \pm 5%-ot.

Eredményeink alapján a javasolt magreakciók közül a $^{78}\text{Se}(p,3n)^{76}\text{Br}$ magfolyamaton alapuló eljárás alkalmas a ^{76}Br termelésére olyan laboratóriumokban, melyek középenergiás proton ciklotronnal rendelkeznek.

Az elért eredményekről eddig 2 (referált) folyóirat cikkben [8, 10] számoltunk be. A munka egy része konferencia előadás keretében is bemutatásra került [4].

2.4. A ^{124}I radioizotóp termelése $^{123}\text{Sb}+^3\text{He}$ magreakcióval

A ^{76}Br -hoz hasonlóan a ^{124}I izotóp is széles körben használt a PET vizsgálatokban. Pályázatunkban az eddig alkalmazott Te+p illetve Te+d reakciók helyett a $^{123}\text{Sb}(^3\text{He},2n)^{124}\text{I}$ magreakciót javasoltuk a ^{124}I gyakorlati termelésére. Ezzel a módszerrel természetes összetételű céltárgy-anyag kerülhet felhasználásra, ami jelentősen csökkenti az előállítás költségeit. A tellúr használata az alapanyagok magas dúsítási foka (>99%) valamint a targetry bonyolultsága miatt rendkívül drága. A javasolt reakcióra ellentmondó kísérleti hatáskeresztmetszet adatok álltak csak rendelkezésre, így mérések nélkül nem becsülhetők kellő pontossággal a várható hozamok.

Az antimon céltárgy optimális besugárzási körülményeinek meghatározása érdekében megmértük az $^{123}\text{Sb}(^3\text{He},2n)^{124}\text{I}$ magreakció gerjesztési függvényét a reakció küszöbenergiájától a 28-ig terjedő energia tartományban. Ugyancsak vizsgáltuk a ^{124}I termelése esetén fő szennyező radioizotópnak számító ^{123}I -ot előállító $^{\text{nat}}\text{Sb}(^3\text{He},x\text{n})^{123}\text{I}$ magreakciók teljes hatáskeresztmetszet adatait is. A hatáskeresztmetszet méréseket a szokásos szendvicsfólia aktiválási technikával végeztük. Céltárgyként vékony (0.2-1.17 μm) vákuumpárolgatott $^{\text{nat}}\text{Sb}$ fóliákat (30 céltárgy) használtunk. Hátlapként 13 μm Kapton, illetve 9 μm Al fóliák szolgáltak. A fólia sorozatokba szokásos módon monitor és energiacsökkentő fóliákat is helyeztünk. A besugárzó nyalábok

energia- és intenzitás monitorizálására a NAÜ által javasolt $^{nat}\text{Cu}(^3\text{He},x\text{n})^{66}\text{Ga}$ és a $^{nat}\text{Ti}(^3\text{He},x\text{n})^{48}\text{V}$ magreakciókat használtuk. A besugárzásokat és méréseket a debreceni ATOMKI és az Åbo Akademi (Turku, Finnország) intézetek ciklotron laboratóriumaiban végeztük (6 kísérlet).

Vizsgálataink alapján a $^{123}\text{Sb}(^3\text{He},2\text{n})^{124}\text{I}$ magreakció gerjesztési függvénye (57 adatpont) az $E_{3\text{He}}=16$ MeV bombázó energiánál érte el a maximumát ($\sigma_{\text{max}}=195$ mb), míg az $^{nat}\text{Sb}(^3\text{He},x\text{n})^{123}\text{I}$ magreakciók legnagyobb hatáskeresztmetszet adata 400 mb ($E_{3\text{He}}=25$ MeV) volt. Eredményeinket összehasonlítva az irodalomban rendelkezésre álló adatokkal, sikerült mindkét reakcióra megbízható adatbázist létrehoznunk. Mindkét reakciónál elméleti számolásokat is végeztünk (ALICE-IPPE). A számolások jó egyezést mutattak a kísérleti adatainkkal, alátámasztva azok használhatóságát.

Az illesztett gerjesztési függvények alapján vastag-céltárgy hozamszámolásokat végeztünk 30 MeV-ig. Ezek alapján a ^{124}I termelésének optimális energia tartományára az $E_{3\text{He}}=18\rightarrow 10$ MeV adódott. Az elérhető hozam, pedig mintegy $6\ \mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ volt 100%-os ^{123}I EOB szennyezés mellett. Figyelembe véve a két radioizotóp felezési ideje közötti jelentős különbséget ($T_{124\text{-I}}/T_{123\text{-I}}: 7.5/1.0$), megfelelő hűtési idő után (~100 h) a szennyezés szintje 1% alá csökken. Dúsított ^{123}Sb alkalmazása esetén jelentősen csökkenthető a hűtési idő, és lehetőség nyílik a közvetlen felhasználásra is, ez azonban drágítja a termelést. A vizsgált reakció jelentősen kisebb hozammal rendelkezik, mint a tellúron alapuló eljárások, de a targetry (TeO_2) problémák és a drága tellúr alapanyagok miatt szóba jöhető alternatív termelési módnak tekinthető. Eredményeink alapján a javasolt magreakción alapuló eljárás alkalmas a ^{124}I termelésére olyan centrumokban, melyek többrészecskés gyorsítóval rendelkeznek.

A gyakorlati termelési körülmények vizsgálatára egy kör alakú (átmérő: 2 cm) vastag platina hátlapon kialakított üregbe sajtolással állítottunk elő ^{nat}Sb céltárgyat. (A platina hátlapot korábban a debreceni rutin ^{123}I termelésnél alkalmaztuk.) A besugárzási idő 10 h, az alkalmazott nyalábáram 10 μA , míg a nyalábenergia 18 MeV volt (5 kísérlet). Az aktiválás befejezése után mintegy 50 h-ig hűtöttük a céltárgyat, hogy a keletkezett szennyezőnek számító ^{123}I nagyobb része lebomoljon. A radio-jód besugárzott antimonból történő kinyerésére kifejlesztett egyetlen irodalmi eljárás számunkra nem bizonyult alkalmasnak, mivel annak egyik lépése során inaktív jód hordozó hozzáadása is szükséges. A hordozómentes termelés érdekében ezért a Se/Br kinyerésénél jól bevált termokromatográfiás elválasztást alkalmaztuk. Az antimon magasabb olvadáspontja miatt a száraz desztilláció 700 °C-on megy végbe, egyébként azonos körülmények között. A szeparációs idő itt körülbelül egy órának adódott. Tapasztalataink szerint az antimonból jóval több párolog el (kb. 9 %), mint a Se/Br rendszer esetén, de ez a termokromatográfiás készülék hidegebb részein (250 -180 °C) teljesen leválik. (Ezt dúsított anyag esetén vissza lehet nyerni.) Az argon vivógáz a radio-jódot a csapdába szállítja, ahol 0,001 M NaOH-ban nyeletjük el. A bomláskorrigált hozam $72\pm 5\%$ nak adódott.

Az elért eredményekről eddig 1 (referált) folyóirat cikkben [13] számoltunk be.

3. Egyéb, a kutatási tervhez szorosan kapcsolódó eredmények

A kutatási program végrehajtása során olyan eredményeket is elértünk, amelyek az eredeti célkitűzéseink között nem szerepeltek. Méréseink minden előállított izotópra kiterjesztett részletes feldolgozása során azonban olyan adatokat is kaptunk, amelyek néhány további radioizotóp termelése szempontjából alapvető fontosságúnak bizonyulhatnak. A magadat mérések kiterjesztésének eredményeként (nagyobb energia tartományokra, más bombázó részecskékre,

illetve céltárgy-alapanyagokra) jutottunk el ezekhez az információkhoz, melyek szorosan kapcsolódtak a kutatási programhoz. Az alábbiakban csak a főbb eredményeket ismertetjük. A kísérleti körülmények vagy megegyeznek az eredetileg vizsgálni kívánt radioizotópoknál fentebb leírtakkal, vagy a részletek a már megjelent cikkekben érhetőek el.

3.1. A ^{75}Br , ^{77}Br és a $^{80\text{m}}\text{Br}$ radioizotópok $\text{Se}+\text{p}$ reakciókkal történő termelésére vonatkozó eredmények

A besugárzások során különböző szelén (^{77}Se , ^{78}Se és ^{80}Se) céltárgy-anyagokat aktiváltunk az $E_p < 100$ MeV energia tartományban, és vizsgáltuk az összes keletkező bróm ($T_{1/2} > 1$ h) radioizotóp gerjesztési függvényét. A hozamszámolások alapján, a terápiás célú Auger-elektron bomló ^{77}Br ($T_{1/2} = 57.04$ h) és $^{80\text{m}}\text{Br}$ ($T_{1/2} = 4.4$ h), valamint a ^{75}Br ($T_{1/2} = 1.6$ h, PET) termelésére az alábbi eredményeket kaptuk. **$^{80\text{m}}\text{Br}$ reakció:** $^{80}\text{Se}(\text{p},\text{n})^{80\text{m}}\text{Br}$, energia tartomány: $E_p = 16 \rightarrow 2$ MeV, hozam: 21.7 mCi/ μAh , **^{77}Br reakció:** $^{80}\text{Se}(\text{p},4\text{n})^{77}\text{Br}$, energia tartomány: $E_p = 50 \rightarrow 43$ MeV, hozam: 5.37 mCi/ μAh , EOB szennyezés: ^{76}Br (8%); **^{77}Br reakció:** $^{78}\text{Se}(\text{p},2\text{n})^{77}\text{Br}$, energia tartomány: $E_p = 26 \rightarrow 14$ MeV, hozam: 5.9 mCi/ μAh ; **^{75}Br reakció:** $^{78}\text{Se}(\text{p},4\text{n})^{75}\text{Br}$, energia tartomány: $E_p = 66 \rightarrow 22$ MeV, hozam: 90.45 mCi/ μAh . Az említett radioizotópok gyakorlati termelésére a fenti módszerek - a jó hozamok és az EOB tisztaságok miatt - alkalmasnak bizonyulhatnak. A száraz desztillációs módszer a fenti brómizotópok esetén is jól alkalmazható. Eredményeinket referált folyóiratban közöltük, illetve egy cikk megjelenés alatt áll. [10, 15]. Megjelenés alatt: Spahn I., Steyn G. F., Vermeulen C., Kovács Z., Szelecsényi F., Shehata M. M., Spellerberg S., Scholten B., Coenen H. H., Qaim S. M.: New cross section measurements for the production of the Auger electron emitters ^{77}Br and $^{80\text{m}}\text{Br}$. *Radiochimica Acta* **98**(2010), (DOI **10.1524/ract.2010.1781**).

3.2. A ^{124}I radioizotóp $\text{Sb}+\alpha$ reakcióval történő előállítására vonatkozó eredmények

Lehetőségünk nyílt a meglévő Sb céltárgyak α -részecskékkel történő besugárzására is a 20 MeV-ig terjedő energia tartományban. Vizsgáltuk a $^{121}\text{Sb}(\alpha,\text{n})^{124}\text{I}$ és a $^{\text{nat}}\text{Sb}(\alpha,\text{xn})^{123}\text{I}$ magreakciókat a ^{124}I termelhetőségének szempontjából. A mért hatáskeresztmetszet adatok [(α,n) : $E_\alpha = 17$ MeV, $\sigma_{\text{max}} = 420$ mb; (α,xn) : $E_\alpha = 26$ MeV, $\sigma_{\text{max}} = 680$ mb] alapján a ^{124}I várható hozama az $E_\alpha = 16 \rightarrow 8$ MeV energia ablakban mintegy 22 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ -nak adódott, gyakorlatilag nulla ^{123}I EOB szennyezés mellett. Ennek alapján ez a reakció lényegesen nagyobb hozamúnak bizonyult, mint a $^{123}\text{Sb}(\text{}^3\text{He},2\text{n})^{124}\text{I}$ folyamat és eredményesebben is használható termelési célokra. A szeparációra ugyanaz az eljárás alkalmazható, mint a $\text{Sb}+^3\text{He}$ módszernél. Eredményeinket referált folyóiratban közöltük [13].

3.3. A ^{124}I radioizotóp $^{\text{nat}}\text{Te}+\text{p}$ magreakcióval történő termelésére vonatkozó eredmények

A dúsított Te céltárgyon való ^{124}I termelés technikai nehézségei és nagy költségei miatt vizsgáltuk a természetes tellúr céltárgy alkalmazhatóságát a fenti izotóp előállítására. Természetesen, tiszta formában nem állítható elő ezzel a módszerrel a ^{124}I , de vannak olyan jelzéstechikai előkísérletek, amelyekben megengedhető a szennyezők (pl. ^{123}I , ^{125}I , ^{126}I) jóval magasabb aránya. A gerjesztési függvények mérésére vékony (~ 0.4 μm) $^{\text{nat}}\text{Te}$ céltárgyakat készítettünk vákuumpárologtatással 10 μm vastag Al hátlapokra. A besugárzásokat a NIRS gyorsítójával hajtottuk végre. Összesen négy fóliasorozatot aktiváltuk, különböző bombázó energiákkal (63.6 \rightarrow 17.3 MeV). Vizsgáltuk az összes olyan jó radioizotóp hatáskeresztmetszet adatait, melyek

felezési ideje $T_{1/2} > 20$ min volt. Eredményeink alapján a ^{124}I termelésére az 57→53 MeV energia tartományban célszerű aktiválni a természetes céltárgyakat. 60 h hűtési idő után így mintegy 297 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ hozamot érhetünk el, miközben a ^{123}I és ^{130}I szennyezések aránya 13% illetve 1% alá csökken. Hátránya a módszernek az, hogy a hosszú felezési idejű ^{125}I ($T_{1/2} = 59.4$ d) és ^{126}I ($T_{1/2} = 13.11$ d) aránya az „összaktivitásban” jelentősen megnövekszik (3.6% illetve 31.5%-ra) a hűtési idő végére.

Eredményeinket referált folyóiratban közöltük [2].

3.4. A ^{34m}Cl radioizotóp termelésének vizsgálata $^{nat}\text{S} + \alpha$ reakcióval

Vizsgálataink során orvosi részről felvetődött annak szükségessége, hogy a bróm és a jódot mellet egy rövidebb felezési idejű (PET) radio-halogén termelésének lehetőségét is megvizsgáljuk. Erre a célra a ^{34m}Cl ($T_{1/2} = 32.0$ min, $\beta^+ = 55.4\%$)-t választottuk, amelyet a $^{nat}\text{S}(\alpha, x)^{34m}\text{Cl}$ magreakcióval terveztünk előállítani.

A kénből történő vékony-céltárgy készítési problémák miatt, vastag-céltárgy hozamokat mértünk és ebből számoltuk vissza a $^{nat}\text{S}(\alpha, x)^{34m}\text{Cl}$ magreakció gerjesztési függvényét. Speciális alumínium tartóba olvasztottunk nagy tisztaságú kristályos ként, és ezt a céltárgyat sugároztuk be különböző energiákkal. A kén minden esetben teljesen megállította a nyalábot. A maximális alfa energia 69.5 MeV volt. Összesen 21 energiánál mértünk vastag-céltárgy aktivitásokat. A besugárzásokat teljes egészében a NIRS-ben végeztük. A számolt hatáskeresztmetszet görbe ezek alapján 26 MeV-nél érte maximumát, melynek nagysága mintegy 120 mb-nak adódott. A gyakorlati mérések alapján 69.5 MeV-es bombázó energiánál 42 $\text{mCi}/\mu\text{A}$ telítési hozamot lehet elérni, mely elegendő az orvosi vizsgálatokhoz. Megemlítendő, hogy a Japán intézetben már megkezdődött a ^{34m}Cl rutintermelése a fenti reakcióval.

Eredményeinket referált folyóiratban közöltük [3].

3.5. A $\text{Zn} + p$ reakciók adatbázisának kiegészítése a réz és gallium radioizotópokat eredményező reakciókkal

A gallium izotópokon kívül napjainkban a réz izotópokat (^{61}Cu , ^{62}Cu , ^{64}Cu és ^{67}Cu) eredményező magfolyamatok is az érdeklődés homlokterébe kerültek. A ^{68}Ga előállítására vonatkozó méréseink ilyen „egyéb” hatáskeresztmetszet eredményeit felhasználtuk a fenti adatbázisok kiegészítéséhez is. Új adatainkat egy konferencia kiadványban és két folyóirat cikkben közöltük. [5, 7, 11].

3.6. Az $\text{Au} + p$ monitor reakciók adatbázisának bővítése

A különböző bróm, jódot és gallium radioizotópok előállíthatóságának vizsgálata során olyan bombázó energiákat is használtunk ($E_p > 50$ MeV) ahol a szokásos monitor reakciókra vonatkozó hatáskeresztmetszet adatbázisok meglehetősen hiányosak. Méréseink pontossága érdekében, viszont szükség volt arra, hogy a különböző céltárgy-sorozatokat monitorfóliákat is elhelyezzünk. Külön besugárzásokat végeztünk tehát azért, hogy a $^{197}\text{Au}(p, 5n)^{193m}\text{Hg}$, $^{197}\text{Au}(p, p3n)^{194}\text{Au}$, $^{197}\text{Au}(p, 3n)^{195m}\text{Hg}$, $^{197}\text{Au}(p, pn)^{196}\text{Au}$ és a $^{197}\text{Au}(p, n)^{197m}\text{Hg}$ monitorreakciók adatbázisait kiterjesszük (pontosítsuk) az $E_p > 60$ MeV energiatartományra.

A méréseket a szendvicsfólia aktiválási technikával végeztük. Céltárgyként vékony, Au (~10-50 μm) fémfóliákat használtuk, melyeket a Goodfellow Metals-tól rendeltünk. A besugárzásokat és

méréseket a Dél-afrikai iThemba LABS intézet ciklotron laboratóriumában végeztük, különböző besugárzási energiákon (2 kísérlet)

Adataink egy része átfedésben volt a korábbi irodalmi adatokkal, és azokkal jó egyezést mutatott. Ennek alapján megbízhatóan használhattuk a nagyobb energiás besugárzások esetén új adatainkat a nyalábok energia és intenzitás monitorizálására.

Eredményeinkről egy konferencia kiadványban számoltunk be [6].

3.7. Az $^{192}\text{Os}+p$ reakciók vizsgálata Ir és Re radioizotópok termelése szempontjából

A ^{186}Re ($T_{1/2}=3.7183$ d) és a ^{192}Ir ($T_{1/2}=78.83$ d) radioizotópokkal elért eddigi eredmények alapján ezek terápiás alkalmazásai rövidesen széles körben megindulnak. Fontossá vált ezért számunkra (és együttműködő partnereink számára is), hogy megvizsgáljuk a fenti nuklidok centrumainkban való termelésének lehetőségeit. A ^{186}Re izotópra az $^{192}\text{Os}(p,\alpha 3n)^{186}\text{Re}$ reakciót tanulmányoztuk, míg a ^{192}Ir termelésére újramértük a $^{192}\text{Os}(p,n)^{192}\text{Ir}$ magreakciót. A vizsgálatok mindkét folyamatnál kiterjedtek a szennyezők mérésére is.

Eredményeinket referált folyóiratokban közöltük [12, 16].

3.8. A ^{61}Cu új radiokémiai elválasztási módszereinek tanulmányozása

Új, nagyobb hatásfokú szeparációs eljárásokat fejlesztettünk ki a „biomedikális” vizsgálatokhoz használt fenti radioizotópok számára. A ^{61}Cu esetében az eddigi kation-cserélőn alapuló módszer helyett nagyobb hatásfokú (anion-cserélőn alapuló eljárás) dolgoztunk ki. A ^{88}Y izotópra is anion cserélőn alapuló elválasztást fejlesztettünk ki.

Eredményeinket referált folyóiratokban közöltük [9, 14].

3.9. A ^{139}Ce és a ^{133}Ba kalibrációs források előállításának vizsgálata

A gamma sugárzások mérésére használt detektorok (pl. HPGe) hatásfok-energia függvényének kísérleti meghatározásához az alacsonyabb energia tartományokban (<200 keV) pontos és olcsón előállítható (relatív) hitelesítő forrásokra van szükség. Erre a célra vizsgáltuk a ^{133}Ba ($T_{1/2}=10.51$ y) és a ^{139}Ce ($T_{1/2}=137.6$ d) radioizotópok előállítását kis- és középenergiás gyorsítókkal ($^{133}\text{Cs}(p,n)^{133}\text{Ba}$, $^{141}\text{Pr}(p,x)^{139}\text{Ce}$, $^{\text{nat}}\text{La}(p,n)^{139}\text{Ce}$). A vizsgálatok kiterjedtek a termelt izotópok különböző kémiai elválasztási módszereinek tanulmányozására is. A ^{141}Pr céltárgyra alapozott eljárással a Dél-Afrikai intézet már megkezdte a gyakorlati termeléseket. A forrásokat mi is alkalmaztuk a méréseinknél használt detektorok hitelesítéséhez.

Eredményeinket referált folyóiratokban közöltük [1, 17].