

Berechnung der Aktivität von ^{198}Au bei der Bestrahlung mit thermischen Neutronen

Von

H. Sorantin*

Mit 5 Abbildungen

(Eingegangen am 6. April 1965)

1. Einleitung

Die Anzahl von radioaktiven Kernen N_1 , die durch Bestrahlung einer Menge N_0 Atome nach einer Zeit t vorhanden ist, kann durch die in den Lehrbüchern¹ oft zitierte Formel (1)

$$N_1(t) = \frac{N_0 \sigma_0 \Phi}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (1)$$

berechnet werden, wobei σ_0 den Einfangquerschnitt, Φ den thermischen Neutronenfluß und λ_1 die Zerfallskonstante der radioaktiven Kernart bezeichnet.

Die Gleichung (1) gilt jedoch streng genommen nur dann, wenn die Zahl der gebildeten Kerne klein gegen die Anzahl der ursprünglich vorhandenen, reagierenden ist, so daß N_0 während der Versuchsdauer praktisch als Konstante angesehen werden kann.

* Österreichische Studiengesellschaft für Atomenergie Ges. m. b. H., Wien VIII, Lenaugasse 10.

¹ *St. Meyer* und *E. von Schweidler*: „Radioaktivität“, Leipzig, Berlin; 1. Auflage 1916, 2. Auflage 1927. — *G. Hevesy* and *F. A. Paneth*: „A Manual of Radioactivity“, Oxford University Press 1938. *E. Rutherford*, *T. Chadwick* and *C. D. Ellis*: „Radiation from Radioactive Substances“, Cambridge University Press 1930. *F. A. Paneth*: „Radioactive Standards and Units“, Nature [London] **166**, 931 (1950). *G. B. Cook* and *J. F. Duncan*: „Modern Radiochemical Practice“, Oxford Univ. Press 1952. *G. Friedlander* and *T. W. Kennedy*: „Nuclear and Radiochemistry“, 4th edition, New York 1960. *W. Schulze* (und *W. Bock-Werthmann*): „Neutronenaktivierung als analytisches Hilfsmittel; Stuttgart (1962).

Abweichungen zwischen berechneten und experimentell gefundenen Werten könnten jedoch beim Vorliegen einer geringen Menge Ausgangs-atome beobachtet werden, wenn diese einen großen Einfangsquerschnitt aufwiesen oder die Bestrahlungszeiten hinreichend lang waren.

*Izbicki*² gelang es, für diesen Fall durch Anwendung der Graphentheorie auf Probleme der Isotopenerzeugung eine neue Formel (2) aufzustellen, durch die eine Übereinstimmung zwischen numerischer Kalkulation und Meßergebnissen erreicht werden konnte:

$$N_1(t) = \frac{N_0 \sigma_0 \Phi}{\lambda_1 - \sigma_0 \Phi} (e^{-\sigma_0 \Phi t} - e^{-\lambda_1 t}) \quad (2)$$

Vergleicht man die Formeln (1) und (2), so sind sie für kleines t und σ wenig verschieden; die allgemeine Gleichung (1) kann dabei als Näherung der graphentheoretischen (2) aufgefaßt werden. Als bemerkenswerter Unterschied ergibt sich aber, daß für $t \rightarrow \infty$ die konventionelle Gleichung (1) einem Sättigungswert zustrebt, während die *Izbickische* Formel gegen Null geht.

*Izbicki*² konnte seine Theorie bei der Aktivierung von ^{168}Yb , das neben einer kleinen Häufigkeit noch einen großen Einfangsquerschnitt (11 000 barn) besitzt, bestätigen.

Neben diesen Einzelaktivierungen treten bei der Herstellung von Radionukliden im Reaktor noch nachfolgende Betazerfälle oder weitere Neutroneneinfangprozesse³ auf. Zur Berechnung der Kernzahlen des entstehenden Endnuklides werden häufig Ableitungen der Formeln von *Batemann*⁴ herangezogen, die ursprünglich für die Folgeprodukte von natürlichen Radionukliden entwickelt wurden.

Betrachtet man aber beim Vorliegen eines konstanten Neutronenflusses das Ausgangsnuklid als langlebig und ordnet ihm eine konstante „Zerfallsrate“ von $N_0 \Phi \sigma_0$ zu, so können die erwähnten Gleichungen von *Batemann* angewendet werden*.

Beim Auftreten unterschiedlicher Einfangsquerschnitte ergaben sich aber Abweichungen, und die Formeln konnten von *Rubinson*⁵ und von *Seelmann* und *Flegenheimer*⁶ durch die Einführung einer zusammengesetzten Zerfallskonstante

* Wird in der Formel für zwei Glieder (Mutter—Tochter-System) nach *Batemann* konsequent die Zerfallskonstante der Mutter durch $N_0 \Phi_0 \sigma_0$ ersetzt, so kommt man direkt zu der von *Izbicki*² über den Umweg der Graphentheorie erhaltenen Formel (2).

² *H. Izbicki*: Nukleonik **3**, 309 (1961).

³ *E. Ricci* and *F. F. Dyer*, Nucleonics **22**, Nr. 6, 45 (1924).

⁴ *H. Batemann*: Proceed. Cambridge Phil. Soc. **15**, 423 (1910).

⁵ *W. Rubinson*, J. Chem. Phys. **17**, 542 (1949).

⁶ *W. Seelmann-Eggebert* und *T. Flegenheimer*, Comision Nacional de la Energia Atomica Argentina 1957; KFK Report Nr. 111 (1962).

$$\Lambda_n = \lambda_n + \sigma_n \Phi$$

modifiziert werden.

Dabei wird nicht nur die Abnahme der Atome durch den radioaktiven Zerfall, sondern auch noch durch den Neutroneneinfang berücksichtigt.

2. Problemstellung

Bei den Bestrahlungsberechnungen für Herstellung von Radionukliden tauchte die Frage auf: können die einfachen von dem *Batemann*-Ansatz abgeleiteten Formeln verwendet werden oder müssen kompliziertere herangezogen werden?

Eine Überprüfung ergab, daß bei der Bestrahlung wägbarer Mengen von Targetmaterial und endlichen Bestrahlungszeiten, auch wenn die Ausgangskernart einen hohen Einfangsquerschnitt aufweist, im allgemeinen keine Abweichungen eintreten. Nur in einigen Fällen, wie beim bereits zitierten Beispiel von ^{169}Yb , das eine geringe Häufigkeit und großen Einfangsquerschnitt besitzt, sind solche zu bemerken.

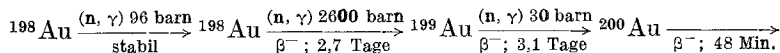
Es schien uns aber auch notwendig, die Auswirkungen zu untersuchen, die sich für die Folgeprodukte ergeben, wenn ein Glied innerhalb einer Bestrahlungskette einen besonders hohen Einfangsquerschnitt gegenüber den anderen aufweist.

Als Demonstrationsbeispiel hielten wir die Aktivierung von Gold für sehr geeignet, da das entstehende Nuklid ^{198}Au vorzugsweise aktiviert wird. Der Fall besitzt auch noch praktische Bedeutung, da Goldnadeln oder Seeds dauernd im Reaktor bestrahlt werden⁷, um für medizinischen Gebrauch sofort zur Verfügung zu stehen. Außerdem wird Gold noch häufig als Bestrahlungsmonitor verwendet.

Wir wollten die dabei auftretende Konvertierung von ^{198}Au zu ^{199}Au bzw. ^{200}Au in Abhängigkeit von verschiedenen Neutronenflüssen und Bestrahlungszeiten mit Hilfe der zitierten Formeln überprüfen.

3. Ausführung

Bei der Bestrahlung von Gold treten folgende Kernreaktionen auf:



3.1 Berechnung der entstehenden Anzahl (N_1) von Tochteratomen ^{198}Au .

⁷ F. W. Felix, D. Pirrwitz und E. Szabó de Bucs, Production and use of shortlived radioisotopes from reactors, Vol. 1, S. 105; International Atomic Energy Agency, Wien 1963.

Für die Bildung von ^{198}Au gilt die bekannte bereits zitierte Bestrahlungsformel (1) oder für die Aktivität:

$$A_1(t) = N_0 \sigma_0 \Phi (1 - e^{-\lambda_2 t}), \quad (1a)$$

wobei in beiden Fällen die Anzahl der stabilen Ausgangsatome von ^{197}Au (N_0) als konstant angesehen wird.

Rubinson⁵, Flegenheimer und Seelmann⁶ verwendeten folgenden Differentialansatz:

$$\frac{dN_1}{dt} = N_0 \sigma_0 \Phi - \lambda_1 N_1 - N_1 \sigma_1 \Phi \quad (3)$$

wobei der erste Term die in der Zeiteinheit gebildeten Atome von ^{198}Au angibt und der zweite die Abnahme durch den radioaktiven Zerfall berücksichtigt. Da aber ^{198}Au einen sehr großen Einfangsquerschnitt gegenüber den anderen Nukliden aufweist, wurde die Konvertierung in ^{199}Au durch den Ausdruck $N_1 \sigma_1 \Phi$ in Rechnung gestellt.

Wird, wie vorher erwähnt, $\lambda_1 + \sigma_1 \Phi$ herausgehoben und gleich Λ_1 gesetzt, so wird als Lösung die Gl. (1) in etwas anderer Form erhalten:

$$N_1(t) = \frac{N_0 \sigma_0 \Phi}{\Lambda_1} (1 - e^{-\Lambda_1 t}) \quad (4)$$

Die Aktivität von ^{198}Au ergibt sich nach Multiplikation mit λ_1

$$A_1(t) = \frac{N_0 \sigma_0 \Phi \lambda_1}{\Lambda_1} (1 - e^{-\Lambda_1 t}). \quad (4a)$$

Aus der allgemeinen Gleichung von Izbicki² kann folgender Ansatz abgeleitet werden:

$$\frac{dN}{dt}(X_1; t) = \lambda (f^{-1} \langle X_0, X_1 \rangle) N(X_0; t) - \mu(X_1) N(X_1; t) \quad (5)$$

mit

$$\lambda = (f^{-1} \langle X_0, X_1 \rangle) = \sigma_0 \Phi$$

$$N(X_0; t) = K_0 e^{-\mu_0 t}$$

$$\mu(X_1) = \lambda_1 + \sigma_1 \Phi$$

erhält man

$$\frac{dN}{dt}(X_1; t) = \sigma_0 \Phi K_0 e^{-\sigma_0 \Phi t} - (\lambda_1 + \sigma_1 \Phi) N(X_1; t)$$

und integriert

$$N(X_1; t) = \frac{K_0 \sigma_0 \Phi}{\lambda_1 + \sigma_1 \Phi - \sigma_0 \Phi} (e^{-\sigma_0 \Phi t} - e^{-(\lambda_1 + \sigma_1 \Phi) t}) \quad (6)$$

Mit K_0 wird hier die Zahl der Ausgangsatome und in „5“ mit $\lambda(0)$ die Bildungsrate $\sigma \Phi$ bezeichnet, während nach *Izbicki*² „ μ “ die Schwundkonstante oder Annihilationskonstante des betreffenden Nuklides darstellt.

3.2 Berechnung der entstehenden ¹⁹⁹Au-Atome.

Die Bildung von ¹⁹⁹Au-Atomen kann mit der konventionellen Formel beschrieben werden:

$$N_2(t) = N_0 \sigma_0 \sigma_1 \Phi^2 \left[\frac{1}{\lambda_1 \lambda_2} - \frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_1 (\lambda_2 - \lambda_1)} - \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 (\lambda_1 - \lambda_2)} \right] \quad (7)$$

oder mit den erweiterten Formeln von *Rubinson*⁵ bzw. *Seelmann* und *Flegenheimer*⁶, wenn Λ_2 gleich λ_2 gesetzt werden kann:

$$N_2(t) = \frac{N_0 \sigma_0 \sigma_1 \Phi^2}{\lambda_2 \cdot \Lambda_1} \left(1 - \frac{\lambda_2 e^{-\Lambda_1 t}}{\lambda_2 - \Lambda_1} + \frac{\Lambda_1 e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 - \Lambda_1} \right) \quad (8)$$

oder

$$A_2(t) = \frac{N_0 \sigma_0 \sigma_1 \Phi^2}{\Lambda_1} \left(1 - \frac{\lambda_2 e^{-\Lambda_1 t}}{\lambda_2 - \Lambda_1} + \frac{\Lambda_1 e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 - \Lambda_1} \right) \quad (8a)$$

Ist die Anzahl der Ausgangsatome nicht mehr als konstant anzusehen, muß nach⁶ eine kompliziertere Stammformel angewendet werden:

$$A_2(t) = N_0 \sigma_0 \sigma_1 \Phi^2 \left[\frac{e^{-\sigma_0 \Phi t}}{(\Lambda_1 - \Lambda_0)(\Lambda_2 - \Lambda_0)} + \frac{e^{-\Lambda_1 t}}{(\Lambda_0 - \Lambda_1)(\Lambda_2 - \Lambda_1)} + \frac{e^{-\Lambda_2 t}}{(\Lambda_0 - \Lambda_2)(\Lambda_1 - \Lambda_2)} \right] \quad (9)$$

Der Ansatz nach *Izbicki*² lautet:

$$\frac{d}{dt} N(X_2; t) = \lambda (f^{-1} \langle X_1, X_2 \rangle) N(X_1; t) - \mu(X_2) N(X_2; t) \quad (10)$$

er geht mit

$$\lambda (f^{-1} \langle X_1, X_2 \rangle) = \sigma_1 \Phi$$

$$N(X_1; t) = \text{Gleichung (6)}$$

$$\mu(X_2) = X_2 + \sigma_2 \Phi$$

über in:

$$\frac{d}{dt} N(X_2; t) = \sigma_1 \Phi \frac{N_0 \sigma_0 \Phi}{\lambda_1 + \sigma_1 \Phi - \sigma_0 \Phi} [e^{-\sigma_0 \Phi t} - e^{-(\lambda_1 + \sigma_1 \Phi)t}] - (\lambda_2 + \sigma_2 \Phi) N(X_2; t)$$

und ergibt nach Integration:

$$N_2(X_2; t) = N_0 \sigma_0 \sigma_1 \Phi^2 \left\{ \frac{e^{-\sigma_0 \Phi t}}{[(\lambda_1 + \sigma_1 \Phi) - \sigma_0 \Phi][(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi) - \sigma_0 \Phi]} + \frac{e^{-(\lambda_1 + \sigma_1 \Phi)t}}{[\sigma_0 \Phi - (\lambda_1 + \sigma_1 \Phi)][(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi) - (\lambda_1 + \sigma_1 \Phi)]} + \frac{e^{-(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)t}}{[\sigma_0 \Phi - (\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)][(\lambda_1 + \sigma_1 \Phi) - (\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)]} \right\} \quad (11)$$

3.3 Berechnung der Kernzahlen von ^{200}Au .

Für die Anzahl der entstehenden ^{200}Au -Atome gilt die konventionelle Formel:

$$N_3(t) = N_0 \sigma_0 \sigma_1 \sigma_2 \Phi^3 \left[\frac{1}{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3} \frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_1 (\lambda_2 - \lambda_1) (\lambda_3 - \lambda_1)} - \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 (\lambda_1 - \lambda_2) (\lambda_3 - \lambda_2)} - \frac{e^{-\lambda_3 t}}{\lambda_3 (\lambda_1 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3)} \right] \quad (12)$$

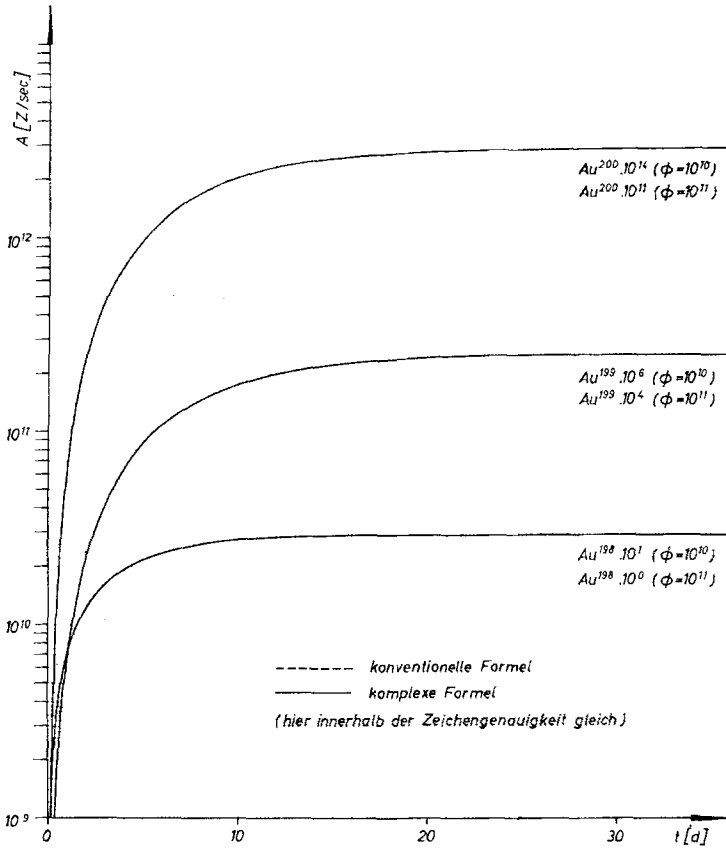
Die Aktivität A_3 kann durch Multiplikation von N_3 mit λ_3 erhalten werden.

Nach *Rubinson* bzw. *Seelmann* und *Flegenheimer* lautet die für die Aktivität entwickelte Formel:

$$A_3(t) = N_0 \sigma_0 \sigma_1 \sigma_2 \Phi^3 \lambda_3 \left[\frac{e^{-\sigma \Phi t}}{(\Lambda_1 - \Lambda_0)(\Lambda_2 - \Lambda_0)(\Lambda_3 - \Lambda_0)} + \frac{e^{-\Lambda_1 t}}{(\Lambda_0 - \Lambda_1)(\Lambda_2 - \Lambda_1)(\Lambda_3 - \Lambda_1)} + \frac{e^{-\Lambda_2 t}}{(\Lambda_0 - \Lambda_2)(\Lambda_1 - \Lambda_2)(\Lambda_3 - \Lambda_2)} + \frac{e^{-\Lambda_3 t}}{(\Lambda_0 - \Lambda_3)(\Lambda_1 - \Lambda_3)(\Lambda_2 - \Lambda_3)} \right] \quad (13)$$

Bei Neutronenflüssen bis $10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ kann $\Lambda_2 = \lambda_2$ und $\Lambda_3 = \lambda_3$ gesetzt werden. Dadurch vereinfacht sich die Formel zu:

$$A_3(t) = \frac{N_0 \sigma_0 \sigma_1 \sigma_2 \Phi^3}{\Lambda_1 \Lambda_2} \left[1 - \frac{e^{-\Lambda_1 t} \lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_2 - \Lambda_1)(\lambda_3 - \Lambda_1)} - \frac{e^{-\lambda_3 t} \Lambda_1 \lambda_3}{(\Lambda_1 - \lambda_2) \cdot (\lambda_3 - \lambda_2)} - \frac{e^{-\lambda_3 t} \Lambda_1 \lambda_2}{(\Lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right] \quad (14)$$



* statt Au¹⁹⁸, Au¹⁹⁹ und Au²⁰⁰ lese man, auch in Abb. 2-5 ¹⁹⁸Au usw.

Wird nach Izbicki²:

$$\frac{dN}{dt}(X_3; t) = \lambda(f^{-1} \langle X_2, X_3 \rangle) N(X_2; t) - \mu(X_3) N(X_3; t) \quad (15)$$

für

$$\begin{aligned} \lambda(f^{-1} \langle X_2, X_3 \rangle) &= \sigma_2 \Phi \\ N(X_2; t) &= \text{Gleichung (11)} \\ \mu(X_3) &= \lambda_3 \end{aligned}$$

eingesetzt, so ergibt die Integration:

$$\begin{aligned}
 N(X_3; t) = N_0 \sigma_0 \sigma_1 \sigma_2 \Phi^3 & \left\{ \frac{e^{-\sigma_0 \Phi t}}{[(\lambda_1 + \sigma_2 \Phi) - \sigma_0 \Phi][(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi) - \sigma_0 \Phi][\lambda_3 - \sigma_0 \Phi]} + \right. \\
 & + \frac{e^{-(\lambda_1 + \sigma_1 \Phi) t}}{[\sigma_0 \Phi - (\lambda_1 + \sigma_1 \Phi)][(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi) - (\lambda_1 + \sigma_1 \Phi)][\lambda_3 - (\lambda_1 + \sigma_1 \Phi)]} + \\
 & + \frac{e^{-(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi) t}}{[\sigma_0 \Phi - (\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)][(\lambda_1 + \sigma_1 \Phi) - (\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)][\lambda_3 - (\lambda_2 + \sigma_2 \Phi)]} + \\
 & \left. + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{[\sigma_0 \Phi - \lambda_3][(\lambda_1 + \sigma_1 \Phi) - \lambda_3][(\lambda_2 + \sigma_2 \Phi) - \lambda_3]} \right\} \quad (16)
 \end{aligned}$$

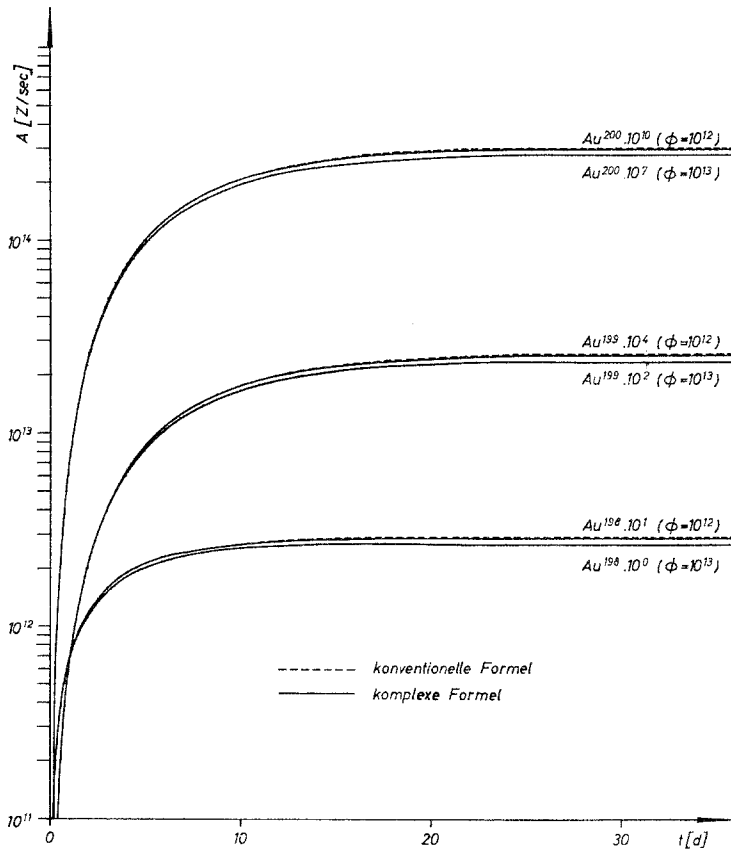


Abb. 2*

Die Aktivität $A(X_3; t)$ kann wiederum durch Multiplikation mit λ_3 erhalten werden.

4. Graphische Darstellung

Um die rechnerischen Ergebnisse besser überblicken zu können, wurden die aus den verschiedenen Formeln erhaltenen Werte für Neutronenflüsse von 10^{10} — 10^{15} $n\text{ cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ in Abhängigkeit von der Be-

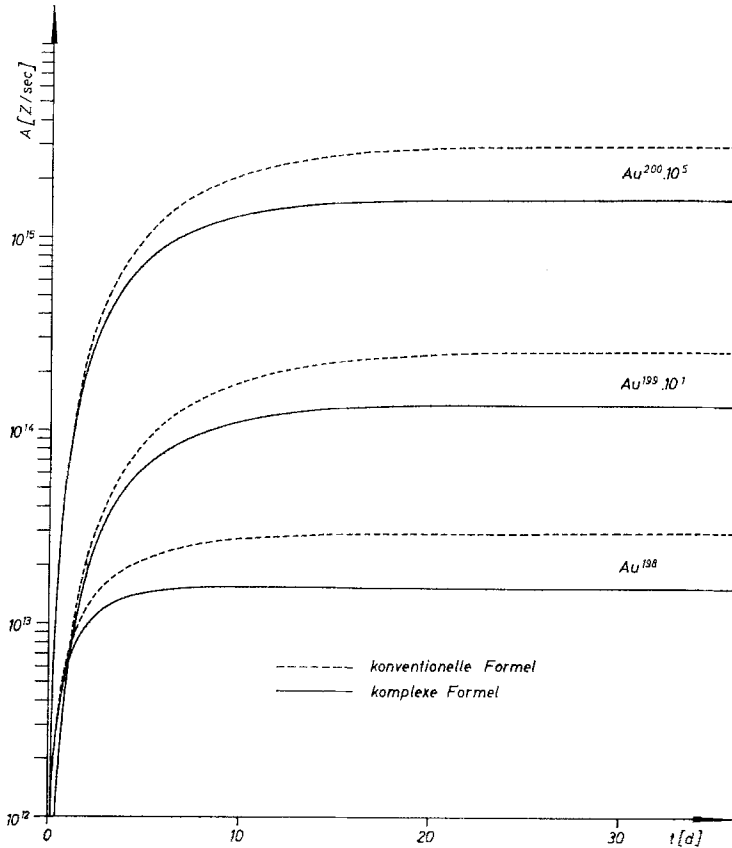


Abb. 3*

strahlungszeit auf halblogarithmischem Papier aufgetragen (Abb. 1—4). Die Bezeichnung „komplexe Formel“ bezieht sich auf die Gleichungen von *Rubinson*, *Seelmann* und *Flegenheimer* bzw. *Izbicki*. Für die Praxis sind hauptsächlich Aktivierungen bis 24 Stunden interessant; deshalb wurde dieser Zeitabschnitt begrenzt dargestellt und Millimeterpapier verwendet, um Interpolationen zu erleichtern (Abb. 5).

5. Diskussion

Die erhaltenen Werte zeigen, daß bei niedrigen Neutronenflüssen bis $1 \cdot 10^{13}$ $n\text{ cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ trotz des hohen Einfangsquerschnittes von

^{198}Au die Zahl der gebildeten Atome von ^{199}Au bzw. ^{200}Au ebenso wie die resultierende Aktivität gering ist. Alle diskutierten Formeln können daher zur Berechnung der Folgeprodukte von ^{198}Au herangezogen werden (Abb. 1 und 2).

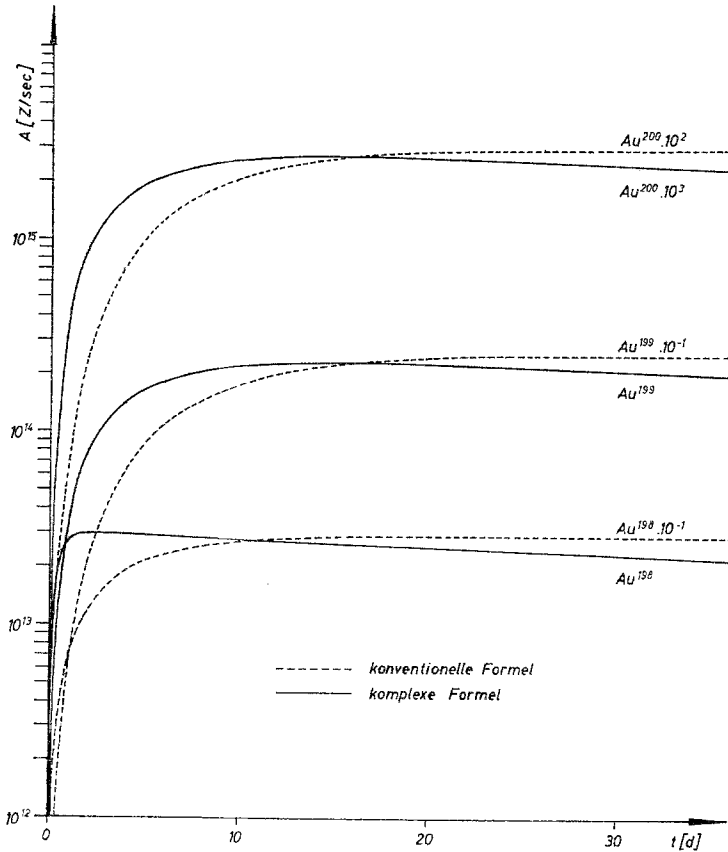


Abb. 4*

Bei Neutronenflüssen über $10^{13} \text{ n cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ macht sich jedoch der Einfluß des großen Einfangsquerschnittes von ^{198}Au in der Bildung einer großen Anzahl von ^{199}Au -Atomen und damit verbundenem Aktivitätsanstieg, wie aus Abb. 2 und 3 ersichtlich, bemerkbar. Zur Berechnung müssen hier unbedingt die erweiterten Formeln von *Rubinson*⁵, *Seelmann* und *Flegenheimer*⁶ oder die graphentheoretischen von *Izbicki*² verwendet werden, wobei die Werte innerhalb der Zeichengenauigkeit gut übereinstimmen.

Dominierend wird der große Einfangsquerschnitt von ^{198}Au erst bei Neutronenflüssen in der Größenordnung von 10^{15} (Abb. 4). Hier

strebt die Aktivität von ^{198}Au nicht mehr einer Sättigung zu, sondern fällt mit zunehmender Bestrahlungszeit ab.

Als Nutzenanwendung dieses Diagrammes ergibt sich, daß Goldfolien als Monitoren nur bei niedrigen Flüssen verwendet werden dürfen.

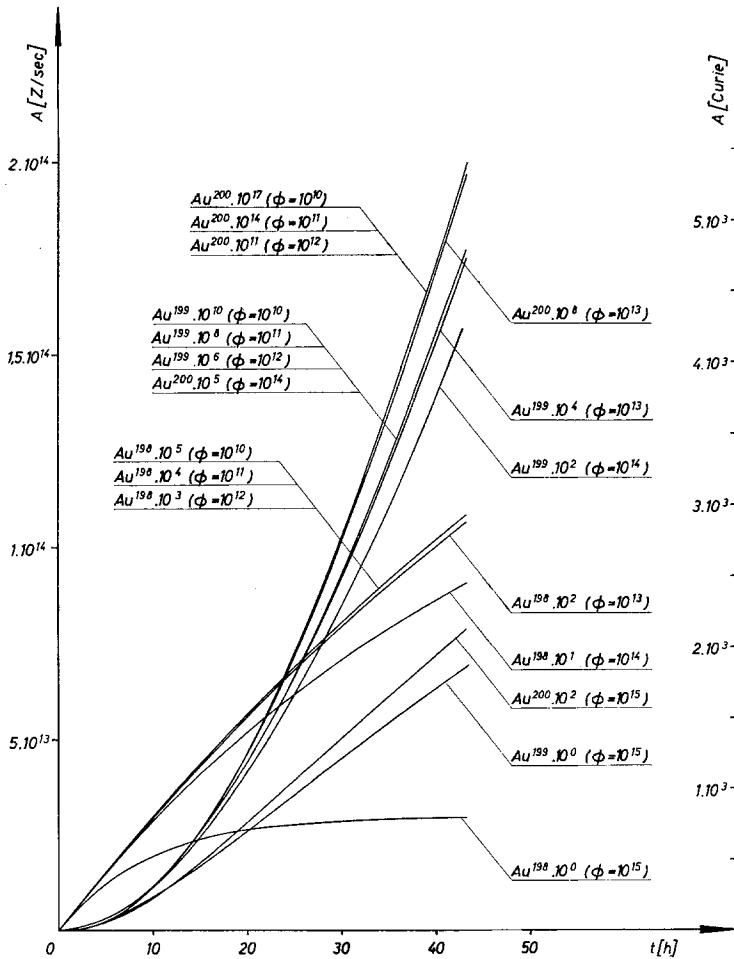


Abb. 5*

Ebenso sollen bei Herstellung von ^{198}Au Neutronenflüsse über $5.10^{13} \text{ n cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ vermieden werden, um eine Konvertierung zu ^{199}Au bzw. ^{200}Au auf Kosten von ^{198}Au zu vermeiden.

Zusammenfassung

Die Anzahl der bei der Bestrahlung mit thermischen Neutronen von Gold gebildeten Radionuklidkerne wurde nach verschiedenen Formeln berechnet,

die resultierende Aktivität in der Zeit von 30 Tagen für Flüsse von 10^{10} bis $10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ graphisch dargestellt und die erhaltenen Ergebnisse diskutiert.

Für Kurzbestrahlungen bis 50 Stdn. wurden eigene Diagramme für die Isotopenherstellung angefertigt.

Es wird gezeigt, daß die konventionellen Bestrahlungsformeln zur Berechnung der entstehenden Radionuklide wegen des großen Einfangsquerschnittes von ^{198}Au nur für Neutronenflüsse bis zu $10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ verwendet werden dürfen und dann durch die zitierten erweiterten Formeln ersetzt werden müssen. Bei thermischen Neutronenflüssen in der Größenordnung von $10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ ist die Abnahme von ^{198}Au bereits so groß, daß die Aktivität von ^{198}Au keiner Sättigung mehr zustrebt, sondern mit zunehmender Bestrahlungszeit abfällt. Als Folgerungen ergeben sich daraus, Goldfolien nur bei niedrigen Flüssen als Bestrahlungsmonitoren zu verwenden und bei der Herstellung von ^{198}Au hohe Neutronenflüsse zu vermeiden.