

## MASTER

### Aanpassingen aan de $^{124}\text{Xe}$ -bestralingsopstelling voor routinematige productie van $^{123}\text{I}$ op de THE

van den Burg, R.M.W.J.

*Award date:*  
1986

[Link to publication](#)

#### **Disclaimer**

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

#### **General rights**

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

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

#### **Take down policy**

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Aanpassingen aan de  $^{124}\text{Xe}$ -bestra-  
lingsopstelling voor routinematige  
produktie van  $^{123}\text{I}$  op de THE

R.M.W.J. van den Burg  
Technische Hogeschool Eindhoven  
Afdeling der Technische Natuurkunde  
Vakgroep Deeltjesfysica  
Onderwerpgroep Cyclotrontoepassingen  
Afstudeerhoogleraar Prof.dr.ir. H.L. Hagedoorn  
Begeleider ir. A.J. Witsenboer

mei 1986

Afstudeerverslag

## INHOUD

Samenvatting

Voorwoord

1	INLEIDING	1.1
2	VERRICHTTE AANPASSINGEN AAN DE BESTRALINGSOPSTELLING	2.1
2.1	Inleiding	2.1
2.2	De nieuwe bestralingsopstelling	2.2
3	BEREKENING VAN DE OPBRENGST VAN $^{123}\text{I}$	3.1
3.1	Inleiding	3.1
3.2	Berekening van de activiteiten	3.2
3.2	Het programma JOOD	3.5
3.4	Vergelijking met experimentele bestralingen	3.8
4	PROTONENVERSTROOIING IN GASTARGETS	4.1
4.1	Inleiding	4.1
4.2	De NSW-theorie	4.3
4.3	Computersimulatie van protonenverstrooiing in een gastarget	4.6
4.3.1	Berekeningsmethode	4.6
4.3.2	Het programma PROSIM	4.12
4.3.3	Parameters die van invloed zijn op de verstrooiing	4.14
4.4	Resultaten	4.16
4.5	Vergelijking met experimentele resultaten	4.18
4.6	Conclusies en discussie	4.22
5	DE VORM VAN DE TARGETHOUDER.	5.1
5.1	Inleiding	5.1
5.2	Dichtheidsreductie bij hoge bundelstromen	5.2
5.2.1	Inleiding	5.2
5.2.2	Vergelijkingen voor het warmtetransport	5.4
5.2.3	Toepassing op gastargets	5.6
5.3	Principe van het bepalen van de vorm van de target houder	5.10
5.4	Het programma PROGRA	5.12
5.5	De excitatiefuncties	5.14
5.6	Resultaten	5.15
5.7	Conclusie en discussie	5.17
6	BEPALEN VAN HET UITSPOELRENDEMENT VAN EEN ALLUMINIUM TARGETHOUDER EN ALLUMINIUM KOELVALLEN	6.1
6.1	Inleiding	6.1
6.2	Experimenten	6.2
6.3	Resultaten	6.4
6.4	Conclusies en discussie	6.6
7	RESULTATEN EN CONCLUSIES	7.1
7.1	Conclusies	7.1
7.2	Nauwkeurighedsbeschouwing	7.4
7.3	Suggesties voor verder onderzoek	7.4
	Literatuur	L.1

## SAMENVATTING

Er is onderzocht welke verbeteringen kunnen worden aangebracht aan de  $^{124}\text{Xe}$ -gastarget-opstelling opdat een hogere opbrengst van  $^{123}\text{I}$  wordt verkregen, en hoe op gecontroleerde wijze de voor de produktie benodigde handelingen kunnen worden verricht. Hierbij is vooral aandacht besteed aan het voorkomen dat extreem duur xenon uit de opstelling ontsnapt, en dat (in geval van calamiteiten) een radioactieve besmetting ontstaat. Om te kunnen manipuleren met het xenon is een nieuw kleppensysteem ontworpen. De bediening van dit kleppensysteem wordt gecontroleerd d.m.v. een Programmable Logic Controller.

Door het berekenen van de protonenverstrooiing in een gastarget m.b.v. een Monte-Carlo-methode is, afhankelijk van de hoeveelheid  $^{124}\text{Xe}$ -gas die bestraald wordt en de druk van dit gas, een vorm voor de targethouder berekend waarbij de  $^{123}\text{I}$ -opbrengst maximaal is.

De berekende protonenverstrooiing aan een dun metaal-folie stemt goed overeen met de in de literatuur vermelde verstrooiing. De verstrooiing in een gastarget klopt redelijk goed met experimenten die op de THE zijn uitgevoerd.

Tenslotte zijn nog experimenten uitgevoerd waarbij het uitspoelrendement van  $^{123}\text{I}$  van een aluminium oppervlak is bepaald. Bij een aluminium oppervlak dat niet bestraald wordt is het uitspoelrendement ca. 95%, maar het uitspoelrendement van de targethouder (waarin het  $^{124}\text{Xe}$  wordt bestraald) is slechts 80%.

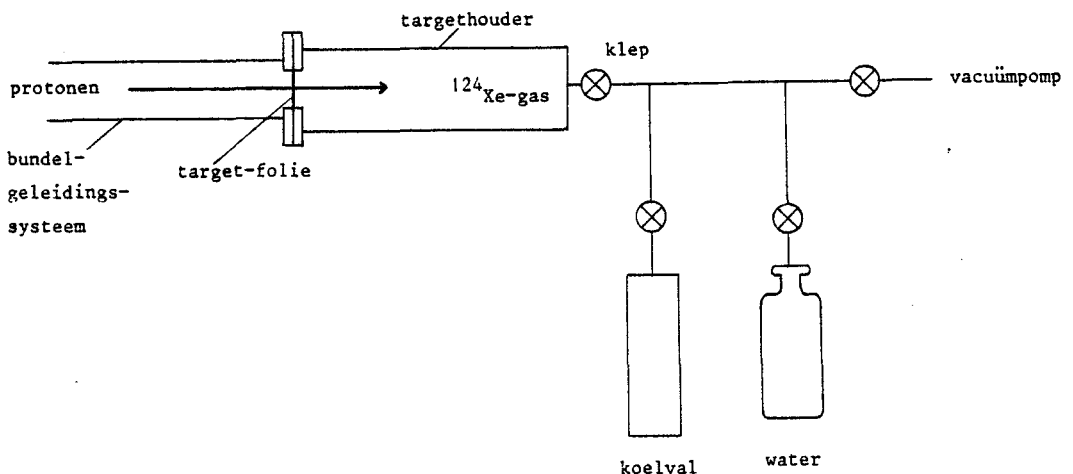
## VOORWOORD

Deze afstudeerstage had tot doel het onderzoeken van een aantal aspecten die betrekking hebben op de produktie van het radionuclide  $^{123}\text{I}$ .

Als xenon-gas bestraald wordt met protonen wordt  $^{123}\text{I}$  gevormd. Dit  $^{123}\text{I}$  slaat neer op de wand van de targethouder. De targethouder is een metalen cylinder, aan één zijde afgesloten door een dun folie, waarin het xenon zich tijdens de bestraling bevindt. Om het  $^{123}\text{I}$  uit de targethouder te verwijderen wordt na de bestraling eerst het xenon-gas uit de targethouder naar een z.g.n. koelval getransporteerd (een koelval is een cylinder waarin xenon in vaste vorm neerslaat als men deze afkoelt met vloeibare stikstof). Vervolgens wordt water in de targethouder gepompt. Het  $^{123}\text{I}$  lost op in dit water en kan daarna met het water uit de targethouder gepompt worden, waarna het verwerkt kan worden tot radiofarmacon (een  $^{123}\text{I}$  bevattende chemische verbinding die gebruikt wordt voor medisch diagnostische doeleinden).

Een zeer vereenvoudigde schematische voorstelling van de bestralingsopstelling is weergegeven in onderstaande figuur. Er is getracht om in dit verslag de verschillende grootheden zoveel mogelijk in S.I.-eenheden uit te drukken. Enkele uitzonderingen hierop zijn de inhoud die in milliliter (ml) wordt gegeven, de energie die in elektronvolts (eV) wordt gegeven, en de tijd waarvoor soms de eenheden minuut (m), uur (h), dag (d) en jaar (y) gebruikt worden (met 1,30 h wordt 1 uur en 30 minuten bedoeld, met 1,30 h  $1^{30}/_{100}$  uur). Verder wordt de activiteit behalve in Bq soms uitgedrukt in Ci. Voor de hoeveelheid gas wordt de eenheid barml gebruikt: 1 barml gas bevat evenveel atomen (moleculen) als een ml van dat gas bij een druk van 1 bar.

Door de aard van het vakgebied is het niet te vermijden enkele engelse vaktermen te gebruiken.



## 1 INLEIDING

In de medische wereld wordt veelvuldig gebruik gemaakt van nucleair geneeskundige technieken om orgaanfuncties en doorbloeding van organen te bestuderen. Hierbij worden radioactieve isotopen in een geschikte chemische vorm, of gelabeld aan verbindingen, in het lichaam van de patiënt gebracht, waarna m.b.v. gammacamera's afbeeldingen van organen en doorbloedingen gemaakt kunnen worden en het functioneren van organen bekeken kan worden (in vivo studie) (zie HAA 84).

Binnen het brede scala van gebruikte radionucliden neemt het radionuclide  $^{123}\text{I}$  een belangrijke plaats in vanwege zijn gunstige chemische en fysische eigenschappen. Chemisch gezien is  $^{123}\text{I}$  een gunstig isotoop omdat het een halogeen is en derhalve op eenvoudige wijze aan allerlei organische verbindingen gelabeld kan worden zonder de chemische eigenschappen van de organische verbinding veel te veranderen.

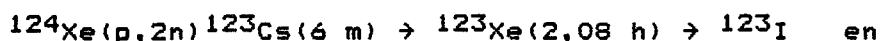
Het radionuclide  $^{123}\text{I}$  blinkt ook uit door zijn goede fysische eigenschappen.  $^{123}\text{I}$  zendt voor 83% gamma-quanten uit met een energie van 159 keV (zie fig. 1.1). Deze energie is zeer geschikt om m.b.v. gammacamera's, die NaI als scintillator bevatten, gedetecteerd te worden. De halveringstijd van  $^{123}\text{I}$  (13,2 h) is lang genoeg om vervoer naar de ziekenhuizen mogelijk te maken.

De stralingsbelasting voor de patiënten aan wie het  $^{123}\text{I}$  toegediend wordt is laag omdat  $^{123}\text{I}$  geen  $\beta$ -deeltjes uitzendt en omdat het een relatief korte halveringstijd heeft (MIR 75).

Sinds december 1984 is op de THE een nieuwe\* produktiemethode in gebruik genomen waarbij  $^{123}\text{I}$  geproduceerd wordt met een zeer hoge radionuclidische zuiverheid. Bij deze methode wordt

\* voorheen vond de produktie van  $^{123}\text{I}$  plaats door een verrijkt  $^{124}\text{Te}$ -target te bestralen met protonen. Bij deze produktiemethode ontstaat echter als radionuclidische verontreiniging  $^{124}\text{I}$  (2-4%) (BOS 77).

99,8% verrijkt  $^{124}\text{Xe}$ -gas bestraald met 26 MeV protonen. Het  $^{123}\text{I}$  ontstaat dan v.n.l. via de volgende 2 reacties:



De opstelling die aanvankelijk gebruikt werd voor de nieuwe produktiemethode wordt beschreven in het afstudeerverslag van Piet Berkers en Alex Jonkers (BER 84).

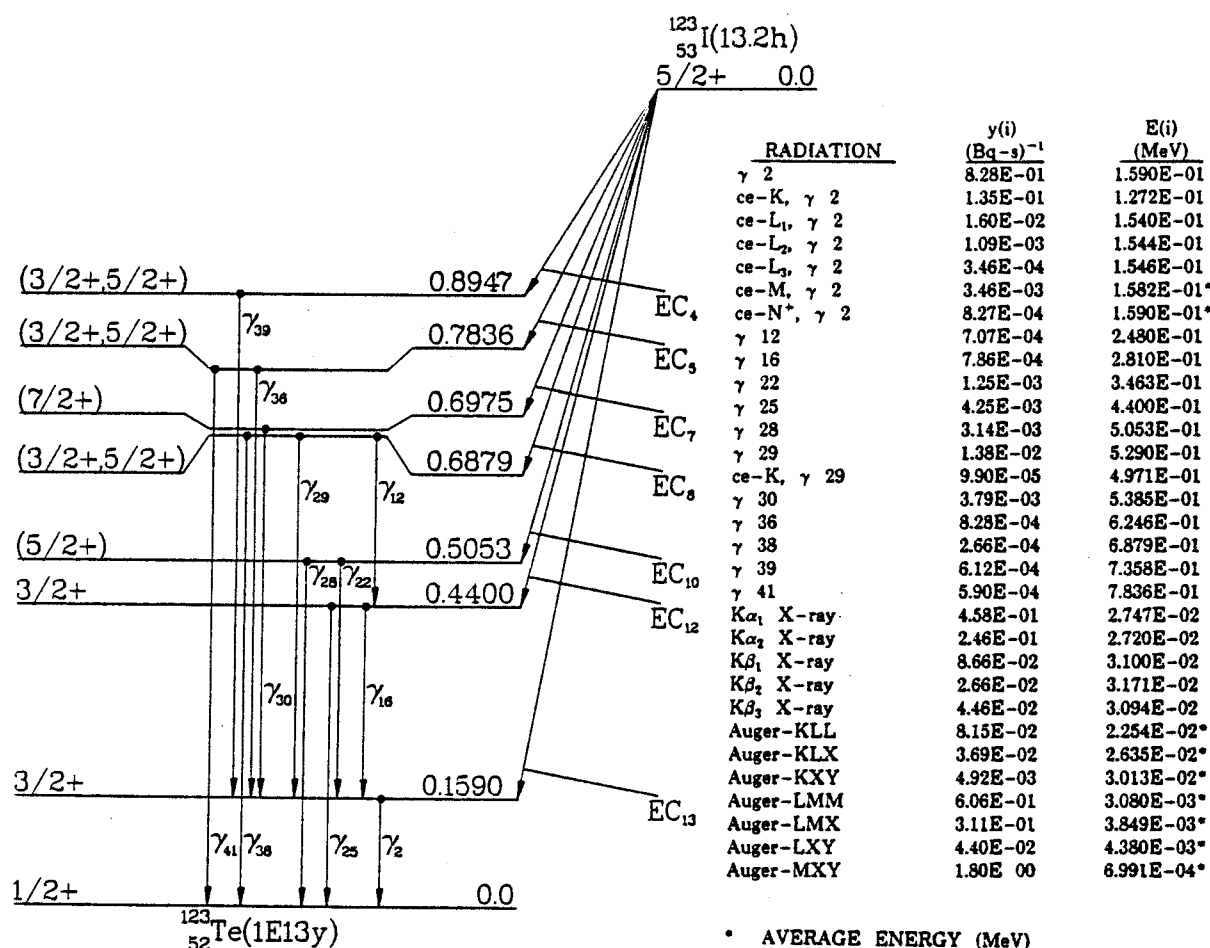


Fig. 1.1 Vereenvoudigd vervalschema van  $^{123}\text{I}$  (ICR 83)

Het doel van de verrichtte werkzaamheden, die in dit verslag beschreven worden, is enkele problemen, die ontstonden nadat de bestralingsopstelling enige tijd gebruikt werd, op te

lossen:

- T.g.v. de activering van de targethouder is het exposietempo rond de opstelling zo hoog dat onderhoud en reparatie aan de opstelling en zelfs het verrichten van enkele voor routineproductie benodigde handelingen slechts in een hoog stralingsveld uitgevoerd kunnen worden.
- Het kleppensysteem blijkt niet voldoende flexibiliteit in het handelen te bieden om in een aantal situaties, die zich bij calamiteiten tijdens de produktie kunnen voordoen, adequaat te kunnen ingrijpen.
- Het kleppensysteem is nauwelijks beveiligd tegen foutieve bediening: als een verkeerde klep geopend wordt kunnen grote hoeveelheden xenon-gas weggepompt worden, met als gevolg een radioactieve besmetting t.g.v.  $^{123}\text{Xe}$ , en een verlies van extreem kostbaar  $^{124}\text{Xe}$  (één liter  $^{124}\text{Xe}$  bij standaard temperatuur en druk kost ca. 500.000,-).
- Na een aantal bestralingen bleek het xenon-gas verontreinigd te zijn, waardoor het manipuleren met het xenon bemoeilijkt werd: het cryopompen (terugwinnen van Xe in een koelval) leverde problemen op. Het bleek noodzakelijk het xenon van tijd tot tijd te 'zuiveren'. Hiermee was echter bij het ontwerpen van het oorspronkelijke kleppensysteem geen rekening gehouden.

Berkers en Jonkers hebben een programma geschreven om de verstrooiing van protonen in een gastarget te berekenen. Omdat dit programma niet geheel bevredigende resultaten opleverde is een nieuw programma geschreven om op theoretische wijze de protonenverstrooiing te berekenen.

Omdat de nu in gebruik zijnde nikkelen targethouder sterk geactiveerd wordt tijdens de bestralingen is gedacht aan het ontwerpen van een aluminium targethouder (die aanzienlijk minder activeert). Om te onderzoeken of het mogelijk is  $^{123}\text{I}$  van een aluminium oppervlak af te spoelen is het uitspoelrendement van een aluminium targethouder en aluminium 'koelvallen' bepaald.



Dit verslag is als volgt ingedeeld:

In hoofdstuk 2 wordt beschreven welke wijzigingen zijn aangebracht aan de oorspronkelijke bestralingsopstelling.

In hoofdstuk 3 wordt beschreven hoe de opbrengst van  $^{123}\text{Cs}$ ,  $^{123}\text{Xe}$  en  $^{123}\text{I}$  m.b.v. een computerprogramma berekend kan worden. Tevens worden de experimentele resultaten van een aantal productie-bestralingen vermeld.

De theoretische berekening van de protonenverstrooiing wordt beschreven in hoofdstuk 4.

In hoofdstuk 5 wordt beschreven hoe een goede vorm voor de targethouder bepaald kan worden, uitgaande van de theoretische protonenverstrooiing en de excitatiefuncties van  $^{124}\text{Xe}$ .

In hoofdstuk 6 wordt beschreven hoe het uitspoelrendement van een aluminium targethouder en van aluminium 'koelvallen' bepaald is.

In hoofdstuk 7 worden enkele resultaten vermeld en conclusies getrokken n.a.v. de gedane werkzaamheden.

Om alle aspecten betreffende de bestralingsopstelling overzichtelijk bij elkaar te hebben is een rapport geschreven, waarin het volgende is opgenomen (BUR 86):

- de beschrijving van de bestralingsopstelling
- de handelingen die verricht worden bij routineproductie
- de beschrijving van de beveiliging van de opstelling m.b.v. een Programmable Logic Controller
- de stralingsveiligheidsaspecten betreffende de bestralingsopstelling

## 2 VERRICHTTE AANPASSINGEN AAN DE BESTRALINGSOPSTELLING

*In dit hoofdstuk wordt beschreven welke veranderingen zijn aangebracht in de door Berkers en Jonkers ontworpen opstelling.*

### 2.1 Inleiding

De door Berkers en Jonkers ontworpen opstelling (BER 84) werd in principe gebouwd om te onderzoeken of het mogelijk was  $^{123}\text{I}$  te produceren door  $^{124}\text{Xe}$  te bestralen met protonen, en te onderzoeken hoe groot de opbrengst was van het  $^{123}\text{I}$  en eventuele radionuclidische verontreinigingen.

Na enige aanpassingen (o.a. het vervangen van de handbediende kleppen door perslucht-bediende kleppen) bleek het mogelijk deze opstelling te gebruiken voor routinematige produktie van  $^{123}\text{I}$ . Sinds december 1984 wordt 2 maal per week  $^{123}\text{I}$  geproduceerd voor levering aan ziekenhuizen.

Na enige tijd ervaring te hebben opgedaan met deze opstelling voor routinematige produktie werd het noodzakelijk geacht een flexibeler kleppensysteem te ontwerpen en enkele andere aanpassingen uit te voeren. De eisen die aan de nieuwe opstelling gesteld werden zijn:

- Alle handelingen die bij een produktie uitgevoerd moeten worden moeten mogelijk zijn met het nieuwe kleppensysteem en de mogelijkheden om met het xenon-gas te manipuleren moeten uitgebreid worden.
- Foutieve bediening van kleppen moet voorkomen worden.
- Door de activering van de opstelling moeten constructieve verbeteringen toegepast worden waardoor onderhoud en reparatie sneller uitgevoerd kunnen worden.
- De maximale bundelstroom op het target moet verhoogd worden.
- Het uitspoelen van de targethouder moet geautomatiseerd worden.

De handelingen die bij een produktie uitgevoerd worden zijn:

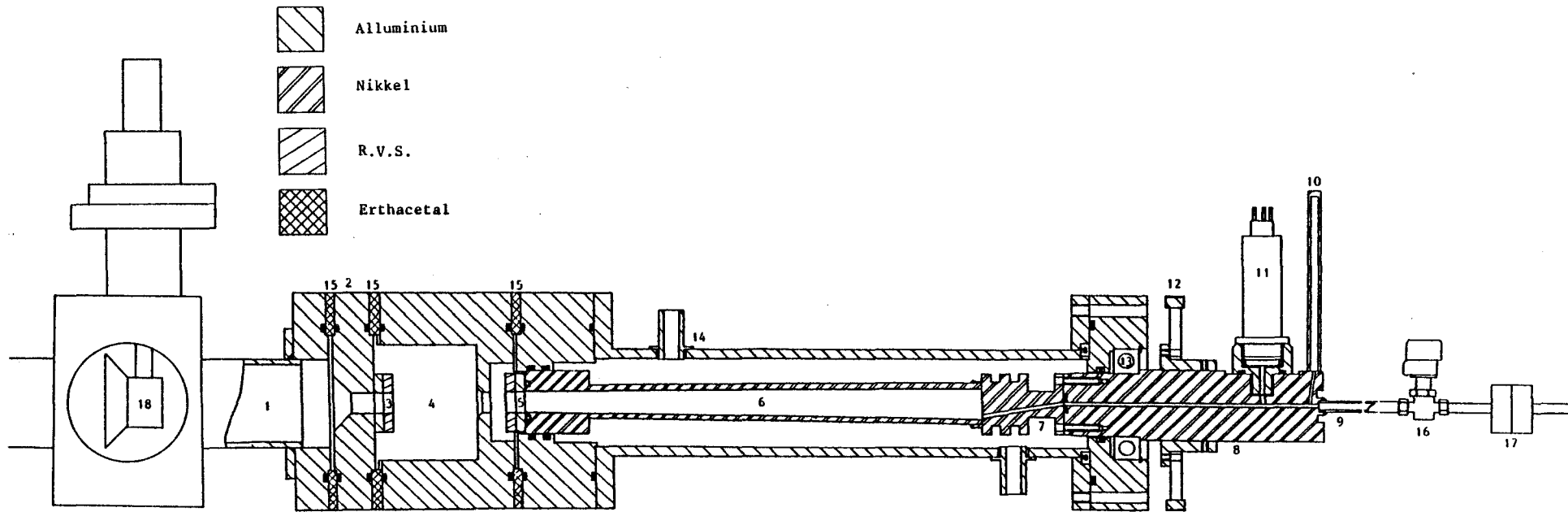
- Het xenon-gas wordt gezuiverd.
- Het xenon-gas wordt uit de koelval(len) overgebracht naar de targethouder
- Het gas wordt bestraald (van  $\pm 17.00$  tot  $\pm 2.00$ ).
- Het gas wordt teruggewonnen in 123-I-koelval-1 ( $\pm 2.30$ ).
- Het  $^{123}\text{I}$  wordt uit de targethouder gespoeld ( $\pm 8.00$ ).
- Het gas wordt van 123-I-koelval-1 overgebracht naar 123-I-koelval-2 ( $\pm 11.00$ )
- Het  $^{123}\text{I}$  wordt uit 123-I-koelval-1 gespoeld.

## 2.2 De nieuwe bestralingsopstelling

Een schematische weergave van de nieuwe bestralingsopstelling is afgebeeld in fig. 2.1 en 2.2.

Hieronder worden de verbeteringen beschreven die aangebracht zijn t.o.v. de oorspronkelijke opstelling.

- De (kunststof) O-ring die zich tussen het 'target-folie' en de targethouder bevond werd door het hoge stralingsnivo sterk aangetast en functioneerde dan niet goed meer. Deze O-ring is vervangen door een metalen O-ring die beter bestand is tegen straling.
- Ten opzichte van de vorige opstelling zijn 2 extra koelval-  
len en 2 extra flesjes met spoelvloeistof geïnstalleerd. Door de extra 123-I-koelval (C4) is eventueel vlak na de bestraling al een gedeelte van het geproduceerde  $^{123}\text{I}$  beschikbaar voor opwerking tot radiofarmacon.
- De hand-bediende kleppen van het oorspronkelijke kleppen-  
systeem zijn vervangen door perslucht-bediende kleppen. Alleen bij de koelval-  
len zijn voor de veiligheid extra hand-  
kleppen aangebracht.



- |   |                         |    |                 |    |                          |
|---|-------------------------|----|-----------------|----|--------------------------|
| 1 | Bundelgeleidingssysteem | 7  | Stopblok        | 13 | Kogellager               |
| 2 | Flens met diafragma     | 8  | Nikkelen staaf  | 14 | Koelmantel               |
| 3 | Buffer-folie            | 9  | Nikkelen buisje | 15 | Erthacetal isolatieflens |
| 4 | Bufferruimte            | 10 | Koelvinger      | 16 | Persluchtklep P5         |
| 5 | Target-folie            | 11 | Drukopnemer     | 17 | Draaibare koppeling      |
| 6 | Targethouder            | 12 | Tandwiel        | 18 | Bundelstop               |

Fig 2.1 De bestralingsopstelling

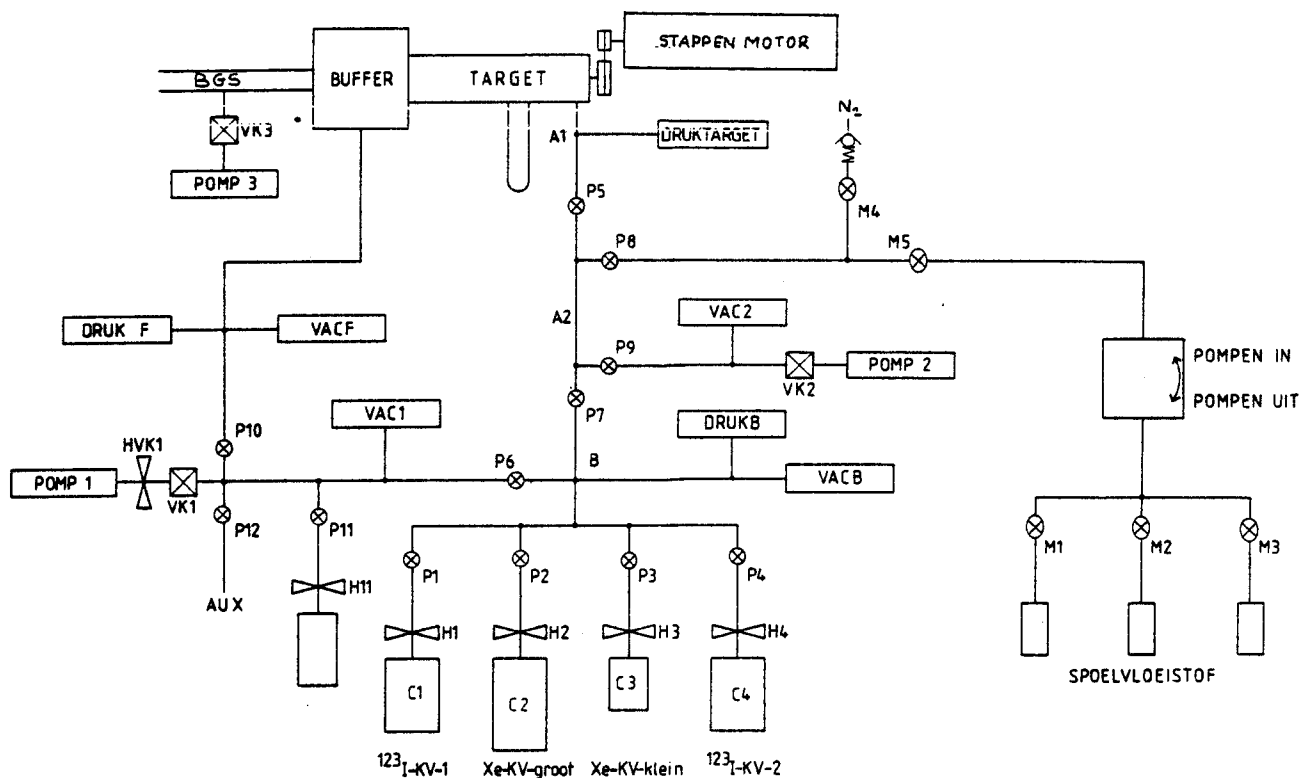


Fig. 2.2 Schematische weergave van het kleppensysteem. P1-P12 zijn perslucht-kleppen, M1-M5 magneetkleppen, VK1-VK3 vacuümkleppen, H1-H4, H11 en HVK1 handkleppen.

-Bij de flesjes met spoelvlloeistof zijn elektrisch bediende magneetkleppen aangebracht.

-Het is nu mogelijk om xenon dat in de bufferruimte gelekt is rechtstreeks terug te winnen in een extra koelval (via P11). De bufferruimte is een ruimte die zich tussen het bundelgeleidingssysteem (BGS) en de targethouder bevindt. De functie van de bufferruimte is het voorkomen dat xenon-gas in het BGS komt indien het targetfolie breekt tijdens een bestraling.

-Het kleppensysteem is zo ontworpen dat er minstens 2 kleppen verkeerd bediend moeten worden alvorens xenon uit het systeem weggepompt kan worden. De bediening van kleppen wordt bovendien gecontroleerd m.b.v. een Programmable Logic

Controller (PLC), waardoor foutieve bediening vrijwel uitgesloten is (zie BUR 86). Om het programma dat door de PLC uitgevoerd wordt overzichtelijk te houden bleek het zinvol in het kleppensysteem een aantal compartimenten te definiëren: compartiment A1 wordt gevormd door de targethouder, de kleine koelvinger en het stukje leiding tussen klep P5 en de targethouder; compartiment A2 is het gedeelte van het kleppensysteem dat begrensd wordt door de kleppen P5, P7, P8 en P9; compartiment B wordt begrensd door de kleppen P1, P2, P3, P4, P6 en P7; de compartimenten C1, C2, C3 en C4 worden gevormd door de 4 koelvallens die voor de opslag van het xenon-gas gebruikt worden. Slechts in de compartimenten A1 en A2 mag zich water bevinden. Door de scheiding tussen compartimenten A1 en A2 en de overige vijf (via P7) kunnen beide gedeeltes onafhankelijk van elkaar gebruikt worden, omdat er geen gevaar bestaat dat er water, lucht of xenon in een verkeerd compartiment terecht komt. Zo is het bv. mogelijk het target uit te spoelen of vacuüm te pompen, en tegelijkertijd in het andere deel van de opstelling xenon te zuiveren.

-De nieuwe bufferruimte is zo ontworpen dat een snelle demontage van de bufferruimte en de folies mogelijk is.

-Er worden andere folies gebruikt dan bij de oorspronkelijke opstelling. De nieuwe folies zijn vervaardigd uit molybdeen, zijn 25  $\mu\text{m}$  dik en hebben een diameter van 12 mm. Uit experimenten is gebleken dat deze folies betrouwbaar zijn bij een bundelstroom van 30  $\mu\text{A}$  en een druk van 8 bar (SLA 86).

-Door de installatie van de PLC is het bovendien mogelijk dat het uitspoelen van  $^{123}\text{I}$  uit de targethouder automatisch uitgevoerd wordt (door een voorgeprogrammeerde volgorde van bediening van de benodigde kleppen en de slangpomp).

### 3 BEREKENING VAN DE OPBRENGST VAN $^{123}\text{I}$

*In dit hoofdstuk wordt aangegeven hoe de activiteit van  $^{123}\text{I}$  en andere relevante radionucliden ( $^{123}\text{Cs}$  en  $^{123}\text{Xe}$ ) tijdens en na een bestraling van  $^{124}\text{Xe}$  met 26 MeV protonen berekend kan worden. Tevens wordt een overzicht gegeven van de gemeten opbrengst van het  $^{123}\text{I}$  na routinematige produktie.*

#### 3.1 Inleiding

Het radionuclide  $^{123}\text{I}$  wordt bij de bestraling van  $^{124}\text{Xe}$  met protonen indirect geproduceerd via twee verschillende reacties:



Omdat het  $^{123}\text{I}$  indirect geproduceerd wordt, wordt niet alleen tijdens, maar ook na de bestraling  $^{123}\text{I}$  gevormd door verval van  $^{123}\text{Cs}$  en  $^{123}\text{Xe}$ .

Bij routinematige produktie van  $^{123}\text{I}$  is het raadzaam om de geproduceerde radionucliden na de bestraling nog gedurende 15 à 30 minuten in de targethouder te laten vervallen; het  $^{123}\text{Cs}$  is dan grotendeels vervallen naar  $^{123}\text{Xe}$ . Hierna kan het gasvormige deel van de inhoud van de targethouder, voornamelijk bestaande uit  $^{124}\text{Xe}$  en  $^{123}\text{Xe}$ , teruggewonnen worden in een koelval (123-I-koelval-1, zie fig. 2.2), waar het  $^{123}\text{Xe}$  verval naar  $^{123}\text{I}$ . Op de wand van de targethouder bevindt zich het reeds gevormde  $^{123}\text{I}$ . Dit  $^{123}\text{I}$  wordt uit de targethouder gespoeld en is vanaf dat moment beschikbaar voor verdere verwerking.

Het  $^{123}\text{Xe}$  in 123-I-koelval-1 wordt, als het grootste gedeelte van het  $^{123}\text{Xe}$  is vervallen (na  $\pm$  8 uur), overgebracht naar een andere koelval (123-I-koelval-2), waarna het in 123-I-koelval-1 gevormde  $^{123}\text{I}$  uitgespoeld wordt.

Eventueel kan het in 123-I-koelval-2 gevormde  $^{123}\text{I}$  ook nog uitgespoeld worden.

Bij de produktie van  $^{123}\text{I}$  is men geïnteresseerd in de opbrengst van het  $^{123}\text{I}$  en de verdeling van dit jodium over de targethouder en de koelvallan. De opbrengst is de activiteit per eenheid van opgebrachte lading, gemeten op een bepaald tijdstip (calibratietijd). Het calibratietijdstip is het tijdstip waarop het  $^{123}\text{I}$ , opgewerkt tot radiofarmacon in de ziekenhuizen ter beschikking moet zijn. Dit tijdstip is ca. 32 uur na EOB (End Of Bombardment).

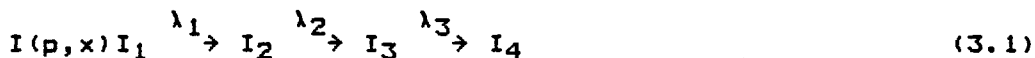
De opbrengst hangt o.a. af van de hoeveelheid gas die bestraald wordt, de grootte van de bundelstroom, het begin- en eindtijdstip van de bestraling (BOB resp. EOB) en de tijdstippen van terugwinnen naar de twee koelvallan.

Als berekend kan worden hoe groot de  $^{123}\text{I}$ -activiteit is in de targethouder en in de koelvallan, dan kan gecontroleerd worden hoe groot het uitspoelrendement van de targethouder is, en kan vlak na EOB al geschat worden hoe groot de activiteit in 123-I-koelval-1 is, afhankelijk van het tijdstip waarop het xenon naar 123-I-koelval-2 wordt teruggewonnen.

### 3.2 Berekening van de activiteiten

We beschouwen het algemene geval dat nuclide 1, met vervalconstante  $\lambda_1$  wordt aangemaakt via een (p,x) reactie op het targetgas. Nuclide 1 vervalt naar nuclide 2, die op zijn beurt met vervalconstante  $\lambda_2$  vervalt naar nuclide 3, etc.

Schematisch ziet dit proces er als volgt uit:



met I = targetkern

$I_i$  = nuclide i

$\lambda_i$  = vervalconstante van nuclide i (s)

Bij deze reacties worden kernen van nuclide 1 aangemaakt met een produktietempo P. Het produktietempo P kan geschreven worden als:



$$P = \phi \cdot f \cdot (N_A/A) \cdot \int_{E_e}^{E_b} \sigma(E) / (-dE/dx)_E dE \quad (3.2)$$

- met
- $P$  = produktiesnelheid ( $s^{-1}$ )
  - $\phi$  = protonenstroom ( $s^{-1}$ )
  - $f$  = fractie waarin het betreffende targetisotoop in het iostopenmengsel voorkomt
  - $N_A$  = getal van Avogadro ( $kmol^{-1}$ )
  - $A$  = massagetal van het isotopenmengsel ( $kg/kmol$ )
  - $\sigma(E)$  = werkzame doorsnede voor de  $I(p,x)I_1$  reactie als functie van de protonenenergie ( $m^2$ )
  - $(-dE/dx)_E$  = stopping power als functie van de protonenenergie  $E$  ( $MeV/(kg/m^2)$ )
  - $E_b$  = beginenergie van de protonen ( $MeV$ )
  - $E_e$  = eindenergie van de protonen ( $MeV$ )

Dit is echter een theoretische waarde voor  $P$ .

Omdat er protonenverstrooiing in het target optreedt, en omdat  $\sigma(E)$  niet goed bekend is is gebruik gemaakt van een experimenteel bepaalde  $P$  (die afhangt van de vorm van de targethouder, het aantal ml STP (Standard Temperature and Pressure)  $^{124}Xe$  en de gemiddelde stroom in het target).

Tijdens de bestraling gelden de volgende basisvergelijkingen:

$$dN_1(t)/dt = P - \lambda_1 N_1(t) \quad (3.3)$$

$$dN_2(t)/dt = \lambda_1 N_1(t) - \lambda_2 N_2(t) \quad (3.4)$$

$$dN_3(t)/dt = \lambda_2 N_2(t) - \lambda_3 N_3(t) \quad (3.5)$$

met  $t$  = tijdstip na het begin van de bestraling (BOB) (s).

Bij aanvang van de bestraling ( $t=0$ ) zijn geen kernen van nuclide  $i$  aanwezig:

$$N_1(0) = N_2(0) = N_3(0) = 0 \quad (3.6)$$

De oplossing van de differentiaalvergelijkingen (3.3) t.m. (3.5) is:

$$N_1(t) = P(1 - \exp(-\lambda_1 t)) / \lambda_1 \quad (3.7)$$

$$N_2(t) = P(1 - \exp(-\lambda_2 t)) / \lambda_2 + P(\exp(-\lambda_2 t) - \exp(-\lambda_1 t)) / (\lambda_2 - \lambda_1) \quad (3.8)$$

$$N_3(t) = P(1 - \exp(-\lambda_3 t)) / \lambda_3 + P(\exp(-\lambda_3 t) - \exp(-\lambda_2 t)) / (\lambda_3 - \lambda_2) + (P\lambda_2 / (\lambda_2 - \lambda_1)) \cdot [(\exp(-\lambda_3 t) - \exp(-\lambda_1 t)) / (\lambda_3 - \lambda_1) + (\exp(-\lambda_2 t) - \exp(-\lambda_3 t)) / (\lambda_3 - \lambda_2)] \quad (3.9)$$

met  $t$  = tijdstip na BOB (s)

Na het beëindigen van de bestraling gelden voor het verloop van het aantal kernen van nuclide  $i$  dezelfde vergelijkingen (3.3) t.m. (3.5), met  $P=0$  (er is geen produktie meer van nuclide 1).

Als het aantal kernen van nuclide  $i$  dat op een tijdstip  $t$  na EOB aanwezig is gegeven wordt door  $N_i(t)$ , dan geldt:

$$N_1(t) = N_1(0) \cdot \exp(-\lambda_1 t) \quad (3.10)$$

$$N_2(t) = \lambda_1 N_1(0) (\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)) / (\lambda_2 - \lambda_1) + N_2(0) \cdot \exp(-\lambda_2 t) \quad (3.11)$$

$$N_3(t) = (\lambda_1 \lambda_2 N_1(0) / (\lambda_2 - \lambda_1)) [(\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_3 t)) / (\lambda_3 - \lambda_1) + (\exp(-\lambda_2 t) - \exp(-\lambda_3 t)) / (\lambda_2 - \lambda_3)] + \lambda_2 N_2(0) (\exp(-\lambda_2 t) - \exp(-\lambda_3 t)) / (\lambda_3 - \lambda_2) + N_3(0) \cdot \exp(-\lambda_3 t) \quad (3.12)$$

met  $t$  = tijdstip na EOB (s)

$N_i(0)$  is het aantal kernen van nuclide  $i$  dat op EOB aanwezig is.  $N_i(0)$  wordt gegeven door:

$$N_i(0) = N_i(T) \quad (3.13)$$

met  $T$  = bestralingsduur (s)

De activiteit van nuclide  $i$  op tijdstip  $t$  wordt gegeven door:

$$A_i(t) = \lambda_i N_i(t) \quad (3.14)$$

Omdat  $^{123}\text{I}$  indirect geproduceerd wordt via 2 verschillende reacties moeten bovenstaande vergelijkingen op beide reacties toegepast worden.

Ten eerste  $^{124}\text{Xe} (p,2n) ^{123}\text{Cs} \rightarrow ^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$ :

Hierbij is  $^{123}\text{Cs}$  nuclide 1,  $^{123}\text{Xe}$  nuclide 2 en  $^{123}\text{I}$  nuclide 3.

Ten tweede  $^{124}\text{Xe} (p,pn) ^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$ :

Hierbij is  $^{123}\text{Xe}$  nuclide 1 en  $^{123}\text{I}$  nuclide 2. Nuclide 3 is hier niet van toepassing.

Gewoonlijk bestaat een bestraling uit 2 delen. Tussen de 2 bestralingen door vindt de produktie van een ander radio-nuclide plaats.

### 3.3 Het programma JOOD

Er is een programma 'JOOD' geschreven waarmee berekend kan worden hoeveel mCi  $^{123}\text{Cs}$ ,  $^{123}\text{Xe}$  en  $^{123}\text{I}$  aangemaakt is op elk moment tussen BOB en calibratietijd. De activiteit van het  $^{123}\text{I}$  is van belang voor de routinematige produktie, de activiteiten van  $^{123}\text{Cs}$ ,  $^{123}\text{Xe}$  en  $^{123}\text{I}$  zijn van belang bij het bepalen van het stralingsrisico.

Omdat de theoretisch berekende exitatiefuncties niet betrouwbaar zijn (GRA 78), en omdat bij de berekening van de produktiesnelheid P geen rekening wordt gehouden met de protonenverstrooiing, die optreedt in het gastarget, is bij de berekening van de activiteit een correctie toegepast.

Experimenteel is bepaald dat bij een korte bestraling van  $^{124}\text{Xe}$  (bij een vuldruk van 2,48 bar) per  $\mu\text{Ah}$  geïntegreerde lading 1,4 mCi  $^{123}\text{I}$  aangemaakt wordt, als de activiteit 34 uur later gemeten wordt. Uit deze gegevens zijn de produktiesnelheden  $P_1$  en  $P_2$  voor beide reacties bepaald, zodanig dat de berekende activiteit gelijk is aan de experimenteel bepaalde activiteit. Als van de exitatiefuncties van Grabmayr (GRA 78) wordt uitgegaan, dan wordt ongeveer evenveel  $^{123}\text{I}$  geproduceerd via de eerste reactie als via de tweede omdat geldt:

$$\int_{E_c}^{E_b} d_1(E) dE \approx \int_{E_c}^{E_b} d_2(E) dE, \text{ ofwel } P_1 \approx P_2$$

Als  $P_1$  niet exact gelijk is aan  $P_2$  wordt een fout gemaakt bij de berekening van de activiteit van de verschillende nucliden. Bij een bestraling van enkele uren is deze fout echter vrij klein voor de  $^{123}\text{I}$ -activiteit (maximaal ca. 0,1% als  $P_1=0$  of  $P_2=0$ ) en voor de  $^{123}\text{Xe}$ -activiteit (max. 2%). De fout in de berekening van de  $^{123}\text{Cs}$ -activiteit is echter wel aanzienlijk indien  $P_1 \neq P_2$  (de  $^{123}\text{Cs}$ -activiteit is evenredig met  $P_1$ ).

Na het invoeren van de benodigde tijdstippen en de hoeveelheid opgebrachte lading wordt de activiteit van het  $^{123}\text{I}$  berekend op calibratietijd, opgesplitst in activiteit in de targethouder, in  $^{123}\text{I}$ -koelval-1 en in  $^{123}\text{I}$ -koelval-2.

Indien gewenst kan een lijst geprint worden van de activiteit van Cs, Xe en I als functie van het tijdstip na BOB.

Behalve in de activiteit van een bepaald nuclide is men uit stralingshygiënisch oogpunt vooral geïnteresseerd in de radiotoxiciteit van dat nuclide. Hiertoe is het begrip ALI (Annual Limit on Intake) geïntroduceerd: inname van een hoeveelheid radionucliden ter grootte van 1 ALI resulteert in een volgdosisequivalent van 50 mSv (5 rem), de dosislimiet. De radiotoxiciteit van een nuclide wordt gedefiniëerd als het quotiënt van de activiteit en de ALI-waarde van dat nuclide (zie DOS 84).

M.b.v. het programma JOOD kunnen grafieken van de activiteit of van de radiotoxiciteit van de geproduceerde nucliden als functie van de tijd, op de verschillende plaatsen (targethouder, koelval-1, koelval-2), getekend worden.

In fig. 3.1 en 3.2 zijn voorbeelden van twee 'activiteitsgrafieken' weergegeven.

De listing van het programma JOOD en een voorbeeld van een computeruitdraai zijn afgedrukt in appendix A.

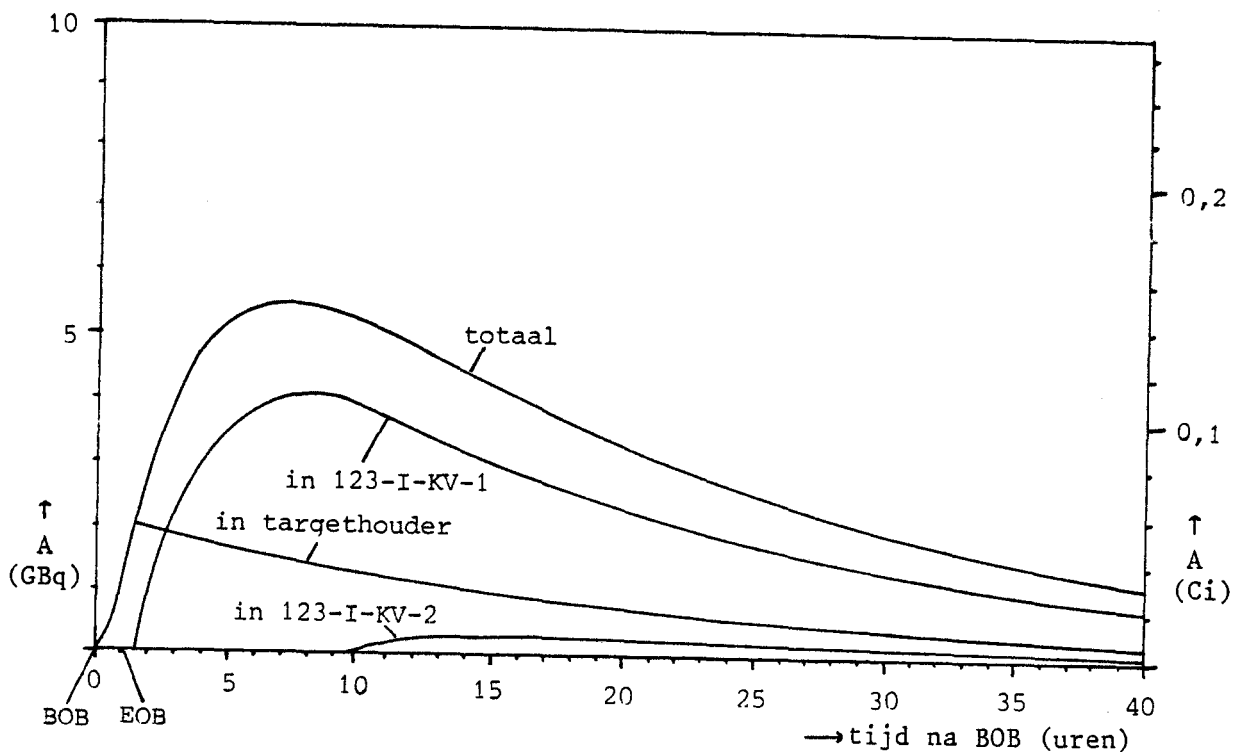


Fig. 3.1 Activiteit van  $^{123}\text{I}$  tijdens en na een bestraling van 1 uur bij een bundelstroom van  $30 \mu\text{A}$ .

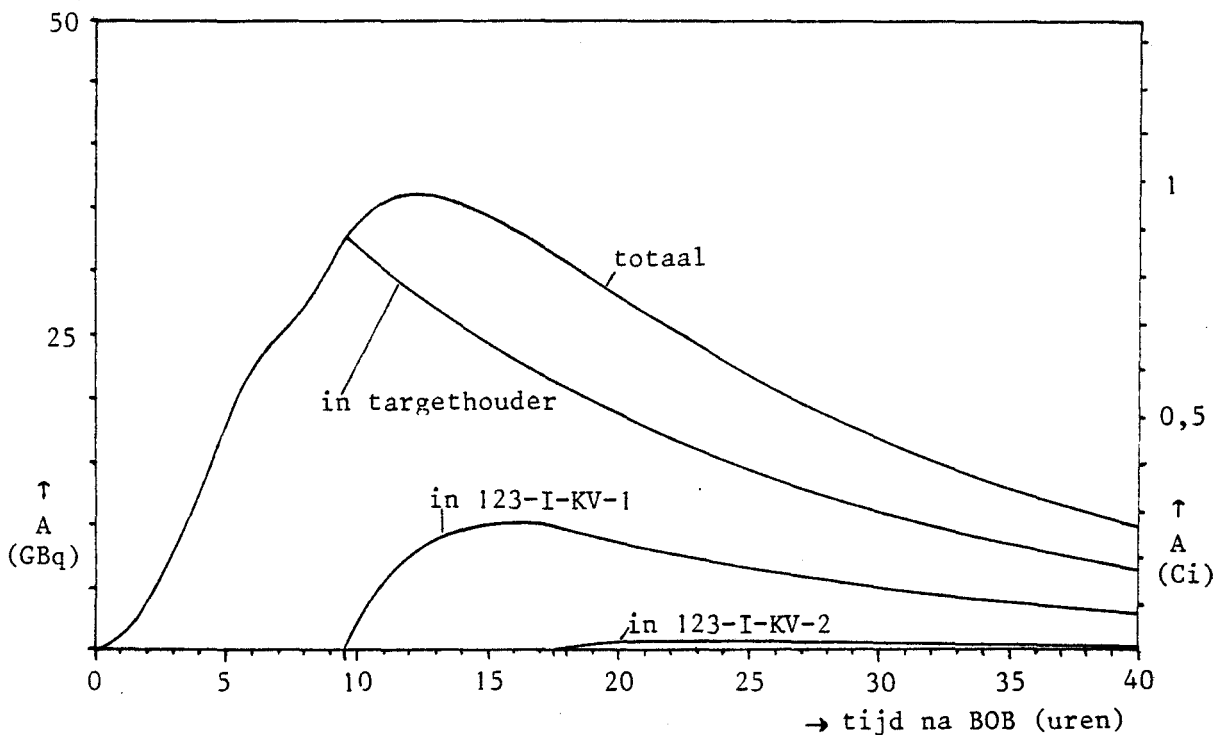


Fig. 3.2 Activiteit van  $^{123}\text{I}$  tijdens en na een uit twee delen bestaande bestraling van totaal 7 uur bij een bundelstroom van  $30 \mu\text{A}$ .

### 3.4 Vergelijking met experimentele bestralingen

In tabel 3.3 zijn van een aantal routinematig uitgevoerde bestralingen de gemeten en de berekende activiteiten van het  $^{123}\text{I}$  in de targethouder en in 123-I-KV-1 gegeven. Bovendien is de berekende produktiesnelheid vermeld. De produktiesnelheid wordt berekend volgens:

$$P_{\text{ber}} = (A_{\text{gemeten}}/A_{\text{berekend}}) \cdot 1,4 \text{ mCi}/\mu\text{Ah} \quad (1\mu\text{Ah} = 0,36 \text{ C})$$

De waarde  $1,4 \text{ mCi}/\mu\text{Ah}$  is een (experimenteel bepaalde) gemiddelde waarde voor de opbrengst bij een target dat, bij een temperatuur van  $17^{\circ}\text{C}$ , een vuldruk heeft van  $2,48 \text{ bar}$ . Omdat behalve de totale activiteit ( $A_{\text{tot}}$ ) ook de activiteiten in de targethouder ( $A_{\text{tar}}$ ) en in 123-I-KV-1 ( $A_{\text{kv}}$ ) afzonderlijk bekend zijn kunnen drie produktiesnelheden berekend worden:  $P_{\text{tot}}$ ,  $P_{\text{tar}}$  en  $P_{\text{kv}}$ .

De vuldruk van het target hangt behalve van de hoeveelheid gas ook af van de temperatuur van het koelwater, waarmee het target gekoeld wordt. De in tabel 3.3 vermelde waarden van de druk zijn teruggerekend naar een koelwater-temperatuur van  $17^{\circ}\text{C}$  (via de ideale gaswet). De zo verkregen drukken zijn evenredig met de hoeveelheid gas (onafhankelijk van de temperatuur).

De produktiesnelheid  $P$  hangt af van de hoeveelheid gas die bestraald wordt. De produktiesnelheden die vermeldt zijn in tabel 3.3, zijn teruggerekend naar een bepaalde hoeveelheid gas (die hoeveelheid waarbij de druk van het target, bij een koelwater-temperatuur van  $17^{\circ}\text{C}$ ,  $2,48 \text{ bar}$  is). Deze produktiesnelheden zijn onafhankelijk van de hoeveelheid gas die bestraald wordt, zodat vergelijking van de produktiesnelheden bij verschillende bestralingen mogelijk is.

datum	druk (bar)	bundel stroom ( $\mu$ A)	Atar (mCi)		Akv (mCi)		Ptar $\frac{\text{mCi}}{\mu\text{Ah}}$	Pkv $\frac{\text{mCi}}{\mu\text{Ah}}$	Ptot $\frac{\text{mCi}}{\mu\text{Ah}}$
			gem	ber	gem	ber			
2- 9-85	2,45	20,2	91	97	67	60	1,30	1,54	1,39
4- 9-85	2,42	20,6	80	80	55	50	1,36	1,52	1,42
9- 9-85	2,43	20,1	83	88	68	59	1,29	1,58	1,41
11- 9-85	2,41	20,8	60	67	57	49	1,22	1,58	1,37
16- 9-85	2,43	24,3	122	133	85	71	1,25	1,65	1,39
18- 9-85	2,43	20,6	75	76	61	55	1,35	1,52	1,42
23- 9-85	2,42	20,3	100	106	70	65	1,28	1,46	1,35
25- 9-85	2,42	20,0	72	71	55	47	1,38	1,62	1,48
30- 9-85	2,42	20,2	82	90	64	61	1,24	1,45	1,33
2-10-85	2,42	20,0	69	66	55	47	1,42	1,58	1,49
7-10-85	2,40	20,0	102	117	68	62	1,18	1,49	1,29
9-10-85	2,41	20,0	70	70	55	50	1,34	1,50	1,41
14-10-85	2,40	20,6	85	96	64	59	1,19	1,46	1,29
16-10-85	2,40	20,0	73	71	51	44	1,39	1,55	1,45
21-10-85	2,39	21,5	100	103	74	62	1,32	1,60	1,42
23-10-85	2,38	20,1	65	61	61	49	1,44	1,66	1,54
28-10-85	2,38	19,9	85	89	74	64	1,28	1,56	1,39
30-10-85	2,33	22,0	75	68	59	49	1,44	1,60	1,51

Tabel 3.3 Gemeten en berekende activiteiten (Atar, Akv) en berekende produktiesnelheden (Ptar, Pkv, Ptot) bij een aantal routinematig uitgevoerde bestralingen. Alle activiteiten zijn berekend op calibratietijd.

De produktiesnelheid varieert per bestraling, omdat de protonenbundel niet steeds op precies dezelfde plaats, en onder dezelfde hoek op het target valt. Als de bundel niet goed uitgelijnd is wordt een groter deel van de protonen in de zijwand van de targethouder gestopt, waardoor de produktiesnelheid daalt.

Het verschil tussen de verschillende berekende produktiesnelheden ( $P_{tar}, P_{kv}$ ) bij één bestraling kan verklaard worden door de volgende effecten:

- Een gedeelte van het  $^{123}\text{I}$  dat in de targethouder gevormd is wordt bij het terugwinnen van het xenon naar 123-I-KV-1 met het xenon meegevoerd waardoor de activiteit van het  $^{123}\text{I}$  in de targethouder afneemt en in de koelval toeneemt.
- Het uitspoelrendement van de targethouder is lager dan dat van de koelval, waardoor vooral in de targethouder een lagere activiteit wordt gemeten dan werkelijk aanwezig is.



#### 4 PROTONENVERSTROOIING IN GAS-TARGETS

*Meer dan bij bestralingen van vaste targets, kan bij de bestraling van gastargets de protonenverstrooiing een belangrijke rol spelen. In de targethouder, waarin het gastarget zich bevindt, kunnen de protonen door Coulomb-interactie met kernen en elektronen zoveel verstrooid worden dat ze voortijdig het target verlaten, waardoor de opbrengst aan radio-nucliden negatief beïnvloed wordt.*

##### 4.1 Inleiding

Wanneer een geladen deeltje zich door materie voortbeweegt zal t.g.v. de wisselwerking met de atoomkernen en elektronen in dit materiaal energieoverdracht plaats vinden van het geladen deeltje naar de atomen in het materiaal. Het gevolg hiervan is dat de energie van het geladen deeltje afneemt, en de voortplantingsrichting verandert. Het proces van opvolgende richtingsveranderingen die optreden bij het doorlopen van het materiaal wordt meervoudige verstrooiing ('multiple scattering') genoemd.

De eerste kwantitatieve behandeling van het probleem van meervoudige verstrooiing van een geladen deeltje aan een dun folie werd uitgevoerd door Williams in 1939 (WIL 39). Zijn werk resulteerde in een verdeling voor de verstrooiingshoek (hoek tussen de richting van het invallend en uitdrend deeltje), die gegeven werd door een Gaussische functie.

Later werden verfijndere benaderingen van dit probleem ontwikkeld door Goudsmit en Saunderson (GOU 40). Onder de aanname dat er geen energieverlies in het folie optreedt, en dat de doorlopen lengte (path length) gelijk is aan de dikte van het folie, werd, uitgaande van de hoekverdeling bij enkelvoudige verstrooiing, een 'exacte' (NIG 59) theorie voor de verdeling bij meervoudige verstrooiing afgeleid. Deze theorie is geldig voor niet te dunne folies (het aantal botsingen in het folie moet zo groot zijn dat de Poisson-

verdeling, volgens welke dit proces verloopt, vervangen mag worden door een Gaussische verdeling (Centrale Limiet Stelling) en niet te dikke folies (de Rutherfordverstrooiing mag geen grote bijdrage leveren tot de totale verstrooiing). Snyder en Scott (SNY 49, SCO 52) gebruikten voor de potentiaal van de target-atomen de vorm  $V=Ze^2/r \cdot \exp(-r/a)$  ('First Born approximation'). Verder gingen zij uit van verstrooiing onder kleine hoeken (paraxiale benadering) en werd het energieverlies in het folie verwaarloosd. Dit resulteerde in een betere benadering voor verstrooiing onder kleine hoeken, terwijl ook de 'single scattering tail', de verdeling voor verstrooiing onder een grote hoek t.g.v. de Rutherfordverstrooiing, tot uiting kwam.

Lewis ontwikkelde de theorie verder door ook rekening te houden met het energieverlies in het folie. Hij ging onder andere uit van een oneindig homogeen medium (geen regelmatig patroon van de target-atomen en geen randverschijnselen) en de 'First Born approximation' voor de potentiaal (LEW 50). Zijn theorie is ook geldig voor lagere energieën en grotere verstrooiingshoeken.

De meest toegepaste theorie echter is die van Molière (MOL 47, MOL 48). In deze theorie is het niet nodig de vorm van de differentiële werkzame doorsnede te kennen. De verstrooiing hangt af van één enkele parameter,  $X_0$ , een afschermings-hoek, waarbinnen geen verstrooiing optreedt door de afschermende werking van de elektronenwolk om de kern van een targetatoom. De grootte van deze hoek is o.a. door Bethe afgeleid (BET 53, BER 84). Als i.p.v. de dikte van het folie gebruik wordt gemaakt van de werkelijk afgelegde weg is de theorie bruikbaar voor vrij dikke folies en vrij grote verstrooiingshoeken.

Door Nigam, Sundaresan en Wu (NIG 59) werd een onvolmaaktheid in de theorie van Molière ontdekt. Zelf ontwikkelden zij een betere benadering van het verstrooiingsprobleem door de 'Second Born approximation' in de potentiaal door te voeren. Voor kleine hoeken wijkt de NSW-theorie (de benadering, ontwikkeld door Nigam, Sundaresan en Wu) nauwelijks af van

die van Molière. Het verschil bij grote hoeken daarentegen is wel significant.

Marion en Zimmerman hebben enkele numerieke berekeningen uitgevoerd aan zowel de Molière-theorie als de NSW-theorie (MAR 67). Van deze berekeningen aan de NSW-theorie is gebruik gemaakt bij het ontwerpen van een simulatieprogramma voor de verstrooiing van protonen in een gastarget (zie § 4.3).

#### 4.2 De NSW-theorie

De NSW-theorie beschrijft de verstrooiing van een geladen deeltje dat een dun folie doorloopt.

De verstrooiing wordt beschreven door een kansverdelingsfunctie,  $f(\theta)$ , voor de verstrooihoek  $\theta$ . De kans dat een deeltje wordt verstrooid onder een hoek die ligt tussen  $\theta$  en  $\theta+d\theta$  wordt gegeven door  $f(\theta)\sin\theta d\theta$ .

Volgens de NSW-theorie wordt de hoekverdelingfunctie gegeven door (MAR 67):

$$f(\theta) = \{K/(X_C^2 B)\} \cdot [F_0 + (1/B)(F_1 + F_i) + (1/2B^2)(F_2 + F_2') + \dots] \quad (4.1)$$

met  $K \approx 1$

$F_0, F_1, F_i, F_2$  en  $F_2'$  worden gegeven door:

$$\int_0^\Gamma [\exp\{1 + \frac{1}{2}X_C^2(\beta^2 + \pi\alpha\beta - \frac{1}{4}\xi)\} \ln(u) \cdot J_0\{\theta u/X_C\sqrt{B}\} \cdot \exp(-\frac{1}{4}u^2) *$$

$$* \begin{cases} du = F_0 \\ \frac{1}{4}\xi u^2 \cdot \ln(\frac{1}{4}u^2) du = F_1 \\ -\pi\alpha\beta X_C \cdot u\sqrt{B} du = F_i \\ [\frac{1}{4}\xi u^2 \cdot \ln(\frac{1}{4}u^2)]^2 du = F_2 \\ -\frac{1}{2}\pi\alpha\beta X_C \xi u^2 \sqrt{B} \cdot \ln(\frac{1}{4}u^2) du = F_2' \end{cases} \quad (4.2)$$

$$\text{met } \Gamma = \sqrt{B}(X_C/X_0) + \frac{1}{2}X_C\sqrt{B} \quad (4.3)$$

$$\alpha = zZ/137 \quad (4.4)$$

$$\xi \approx 1$$

$$\beta = v/c \quad (4.5)$$

$X_C$  is die hoek waarvoor geldt dat er bij de meervoudige ver-

strooiing gemiddeld 1 botsing is met  $\theta > X_c$ .

$X_c$  wordt gegeven door:

$$X_c^2 = 0,01569 Z(Z+1)z^2 \rho d l / A (pv)^2 \quad (4.6)$$

$Z$  = ladingsgetal van folie-materiaal

$z$  = ladingsgetal van verstrooide deeltje

$\rho$  = dichtheid van het folie ( $\text{kg/m}^3$ )

$d l$  = dikte van het folie (m)

$A$  = atoommassa van folie-materiaal ( $\text{kg/kmol}$ )

$$(pv)^2 = (E^2 + 2EM_0c^2) \beta^2 \quad (\text{kgm}^2/\text{s}^2) \quad (4.7)$$

$E$  = gemiddelde energie van het verstrooide deeltje (MeV)

$M_0c^2$  = rustenergie van het verstrooide deeltje (MeV)

$$\beta^2 = 1 - (1 + E/M_0c^2)^{-2} \quad (4.8)$$

Hierin is  $X_0$  de afschermings-hoek waarnaar in de inleiding van dit hoofdstuk werd gerefereerd.  $X_0$  wordt gegeven door:

$$(X_c^2/X_0^2) = 2730 \cdot (Z+1) Z^{1/3} z^2 \rho d l / A \beta^2 \quad (4.9)$$

$f(\theta)$  mag onder bepaalde voorwaarden ( $0,001 < \rho d l < 10 \text{ kg/m}^2$  en  $10 < E_p < 1000 \text{ MeV}$ ) vereenvoudigd worden tot (MAR 67):

$$f(x) = (1/(BX_c^2)) \cdot [F_0 + (1/B) \cdot F_1 + (1/2B^2) \cdot F_2], \text{ met:}$$

$$x = \theta / X_c \sqrt{B} \quad (4.10)$$

$$F_0 = 2 \cdot \exp(-x^2)$$

$$F_1 = \frac{1}{4} \int_0^{\Gamma} u^3 J_0(ux) \cdot \ln(\frac{1}{4}u^2) \cdot \exp(-\frac{1}{4}u^2) du \quad (4.11)$$

$$F_2 = \frac{1}{16} \int_0^{\Gamma} u^5 J_0(ux) \cdot [\ln(\frac{1}{4}u^4)]^2 \cdot \exp(-\frac{1}{4}u^2) du$$

$$\Gamma = \sqrt{B} \cdot \exp\{(B-1,5)/2,2\} \quad (4.12)$$

De hoekverdelingsfunctie, genormeerd op 1 bij  $x=0$ , is nu een functie van slechts 1 parameter,  $B$ .

$B$  is de oplossing van de vergelijking  $B - \ln B = b$  met

$$b = \ln(X_c^2/X_0^2) - 0,1544 \quad (4.13)$$

De beperking van deze theorie komt tot uiting in de maximale en minimale waarden van de parameter  $B$ , waarvoor de theorie geldig is:

De grootte  $e^b$  geeft bij benadering het aantal botsingen dat het deeltje in het folie ondergaat. Omdat de theorie statistisch van aard is mag dit aantal niet te klein zijn, bv. groter dan 10 à 20. (MAR 67). Uit  $e^b=15$  volgt  $b=2,7$  en  $B=4$ . Bij de theorie is er vanuit gegaan dat het deeltje in het folie geen energie verliest. Bij elke botsing is echter wel degelijk sprake van energieverlies. Door Marion en Zimmerman wordt als redelijk criterium geëist dat het energieverlies in het folie kleiner is dan 20% van de beginenergie. Hieruit volgt dat  $B$  kleiner moet zijn dan ca. 15.

De geldigheid van de theorie is dus alleen in hoge mate gewaarborgd voor  $4 < B < 15$ . Voor Xe komen deze waarden van  $B$ , bij een gemiddelde energie van 26 MeV, overeen met een targetdikte tussen 0,002 en 20  $\text{kg/m}^2$ ; een energieverlies van 5,2 MeV (20% van 26 MeV) komt echter overeen met een dikte van 4,5  $\text{kg/m}^2$ , hetgeen dus een bovengrens is voor de geldigheid van de theorie. Bovendien is de theorie alleen geldig voor dunne folies (er wordt aangenomen dat de doorlopen afstand gelijk is aan de dikte van het folie) en dus niet voor een medium in de vorm van een gas-target met een dikte van vele centimeters.

Omdat  $f(x)$  slechts van de parameter  $B$  afhangt kunnen er een aantal universele verdelingsfuncties berekend worden m.b.v. numerieke integratie technieken. Dit is door Marion en Zimmerman uitgevoerd voor de kansverdelingsfuncties behorend bij  $B=4,5,6,7,8,9,10$  en 12. In figuur 4.1 zijn deze functies getekend. In Appendix B zijn de functiewaarden getabelleerd. Alle verdelingsfuncties lijken voor kleine (genormeerde) hoeken sterk op Gaussische functies, maar voor grotere hoeken is de verstrooiingskans volgens de NSW-theorie aanzienlijk groter dan volgens de Gaussische benadering met gelijke breedte bij het  $1/e$ -punt.

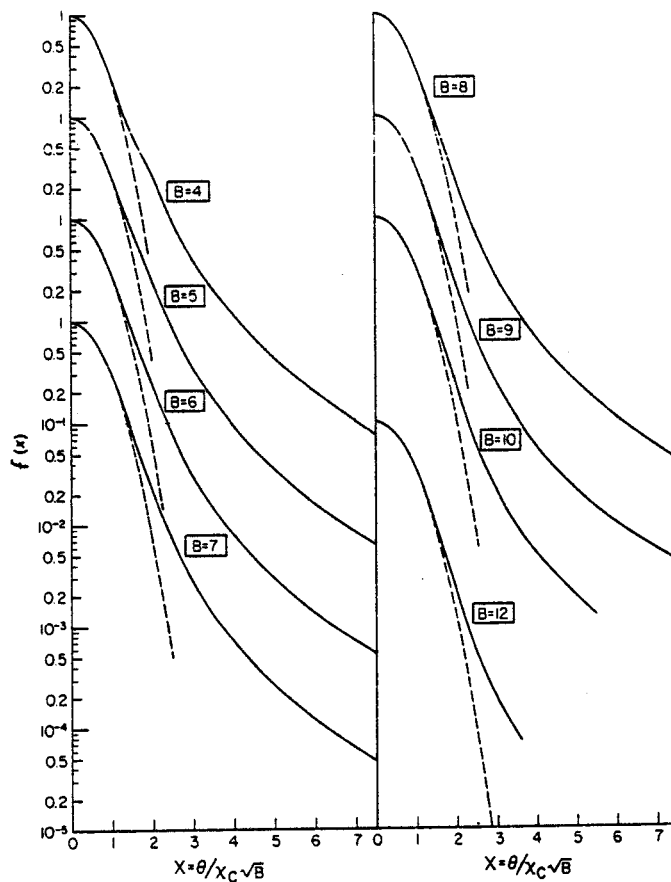


Fig. 4.1 Hoekverdelingsfuncties volgens de benaderde NSW-theorie. De curven zijn gegeven voor verschillende waarden van de parameter B. De onafhankelijke variabele is  $x = \theta / X_c \sqrt{B}$ . Alle curven zijn genormeerd op 1 bij  $x=0$ . De onderbroken curven zijn Gaussische functies met dezelfde breedte op het  $1/e$  punt (MAR 67).

### 4.3 Computersimulatie van protonenverstrooiing in een gas-target

#### 4.3.1 Berekeningsmethode

Om het bundelprofiel in een gas-target te berekenen is een programma 'PROSIM' geschreven waarmee de banen van de

protonen in het gas-target gesimuleerd worden.

De baan van een proton wordt gekarakteriseerd door 3 plaatscoördinaten  $x, y$  en  $z$  en 2 hoeken  $\gamma$  en  $\Upsilon$ .  $\gamma$  is de hoek die de baan maakt met de  $z$ -as in de positieve  $x$ -richting,  $\Upsilon$  is de hoek die de baan maakt met de  $z$ -as in de positieve  $y$ -richting. De as van de targethouder is gericht in de positieve  $z$ -richting (zie fig. 4.4).

Verder heeft het proton een energie die afhangt van de plaats in het target (begin-energie verminderd met de energieafname t.g.v. de afremming in het gas).

Aangezien een gas-target enkele tientallen centimeters dik is en de NSW-theorie alleen geldig is voor dunne folies, moet een kunstgreep worden toegepast: het target wordt in de lengte opgedeeld in een aantal compartimenten met gelijke lengte. Een compartiment wordt behandeld alsof het een dun folie is, met dezelfde massa als een compartiment, dat geplaatst is in het midden van het compartiment. Op deze manier wordt het gas-target beschouwd als een aantal folies met gelijke massa, die gelijkmatig over een afstand, gelijk aan de lengte van het target, verdeeld zijn.

Het targetfolie, dat het gas-target scheidt van het BGS, wordt gewoon gehandhaafd (zie fig. 4.2).

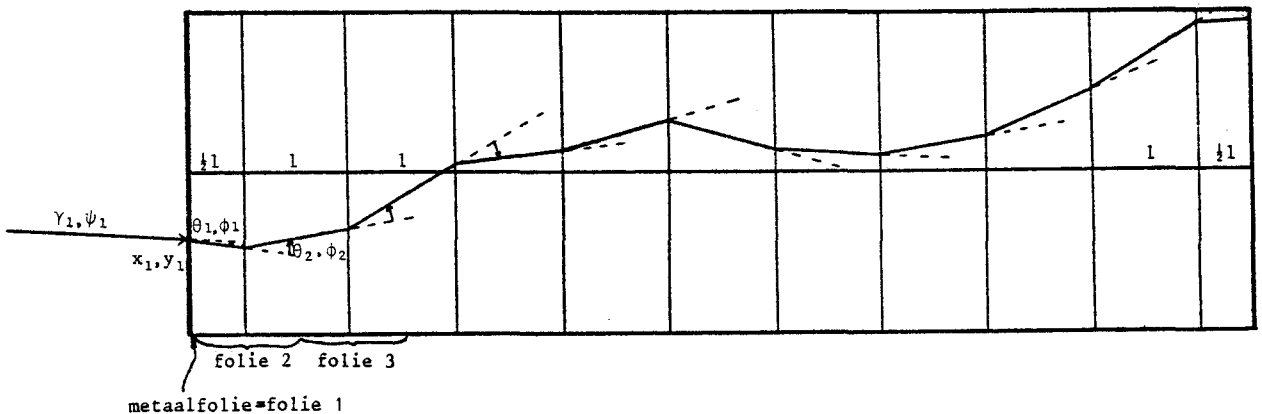


Fig. 4.2 Verdeling van het gas-target in 'folies'

De berekening van de verstrooiing wordt als volgt uitgevoerd: Er wordt een proton gelanceerd dat het targetfolie (folie 1) treft op positie  $(x_1, y_1, 0)$  onder een hoek  $(\gamma_1, \Upsilon_1)$ , en met een energie  $E_{begin}$  (de startpositie  $(x_1, y_1, 0)$  is Gaussisch verdeeld met gemiddelde  $(0,0)$  en standaarddeviatie  $\sigma$ , en om te simuleren dat het proton afkomstig is van een punt dat op de as ligt op een bepaalde afstand van het target-folie worden  $\gamma_1$  en  $\Upsilon_1$  evenredig met  $x_1$  resp.  $y_1$  gekozen). In het targetfolie vindt een energieafremming en een verstrooiing van het proton plaats. De verstrooiing in het targetfolie en in de gasfolies wordt beschreven door de stochastische grootheden  $\theta$  en  $\phi$  (zie fig. 4.3).

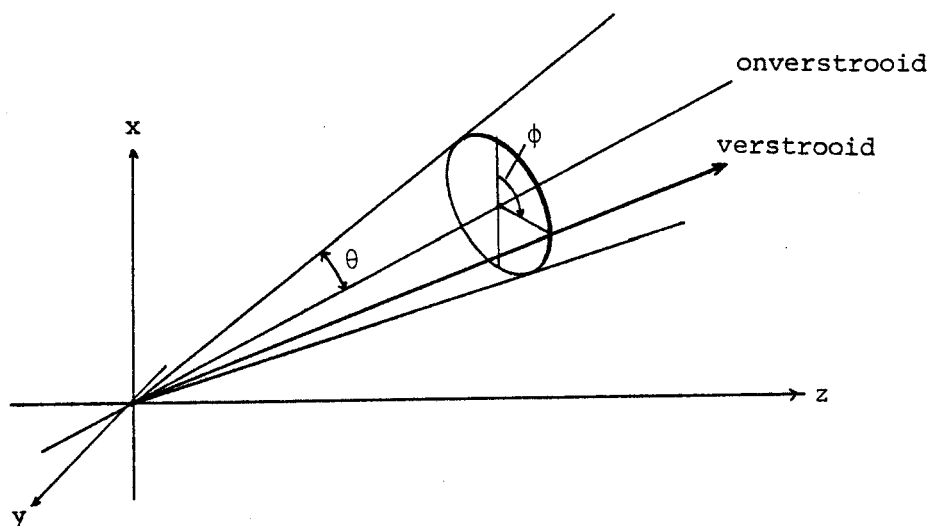


Fig. 4.3 Definitie van de verstrooiingshoeken  $\theta_i$  en  $\phi_i$

Na een verstrooiing in folie  $i$  ( $i=1$  voor het target-folie,  $i=2, \dots, N_{folie}+1$  voor de 'gas-folies') met verstrooiingshoek  $(\theta_i, \phi_i)$  wordt berekend op welke positie en onder welke hoek het proton het volgende folie (folie  $i+1$ ) treft:  $(x_{i+1}, y_{i+1}, z_{i+1})$  resp.  $(\gamma_{i+1}, \Upsilon_{i+1})$ .

Ook in folie  $i+1$  treedt verstrooiing op  $(\theta_{i+1}, \phi_{i+1})$ . Ten gevolge van deze verstrooiing treft het proton folie  $i+2$  op positie  $(x_{i+2}, y_{i+2}, z_{i+2})$  onder een hoek  $(\gamma_{i+2}, \Upsilon_{i+2})$ , etc. Tenslotte wordt het einde van het target bereikt. Dan wordt de afstand van het proton tot de as berekend en opgeslagen in een array  $R_{uit}$ .



Dit hele proces wordt voor vele duizenden protonen herhaald om een goede indruk te krijgen van de verdeling van de verstrooide protonen (het array  $R_{uit}$  bevat op den duur een histogram van de verdeling van de protonen aan het eind van het target). Behalve de verdeling van de protonen aan het eind van het target, wordt ook ter plaatse van maximaal 10 gas-folies de verdeling van de protonen, alsmede hun energie ter plaatse van die folies berekend en opgeslagen in de arrays opbr en  $E_f$ . Deze gegevens worden gebruikt bij het berekenen van een goede vorm voor de targethouder (zie hfdst. 5).

Alle relevante gegevens worden tijdens en na afloop van de berekening op schijf opgeslagen in een file.

Volgens (4.10) wordt de afbuighoek  $\theta_i$  gegeven door:

$$\theta_i = x \cdot X_c \sqrt{B} \quad (4.14)$$

waarbij  $x$  een stochastische variabele is met kansverdelingsfunctie  $f(x)$ , zoals beschreven in de NSW-theorie (vooral voor kleine waarden van  $x$  lijkt deze functie op een standaard-normale kansverdelingfunctie (MAR 67)).

Voor de berekening van de verstrooiingshoeken  $\theta$  en  $\phi$  wordt verwezen naar appendix B.

Omdat  $\theta_i$  o.a. afhangt van de gemiddelde energie van het proton in het folie moet getracht worden de energieafremming in het gas zo goed mogelijk te bepalen. Bij gebruik van verrijkte gassen moeten de getabelleerde waarden voor de stopping power ( $-dE/gdl$ ) gecorrigeerd worden (zie appendix B).

Omdat het proton na elke 'botsing' in het target een kleine richtingsverandering ondergaat is de baan van het proton niet recht. Door de variatie in de afgelegde weg ontstaat een (stochastische) variatie in de energieafremming (stragging). Als aangenomen wordt dat de baan wél recht is wordt een fout gemaakt bij de berekening van de energie van het proton op een bepaalde plaats in het target. Omdat deze fout kleiner is dan 1% van de werkelijke waarde van de energie wordt dit effect in het vervolg verwaarloosd.

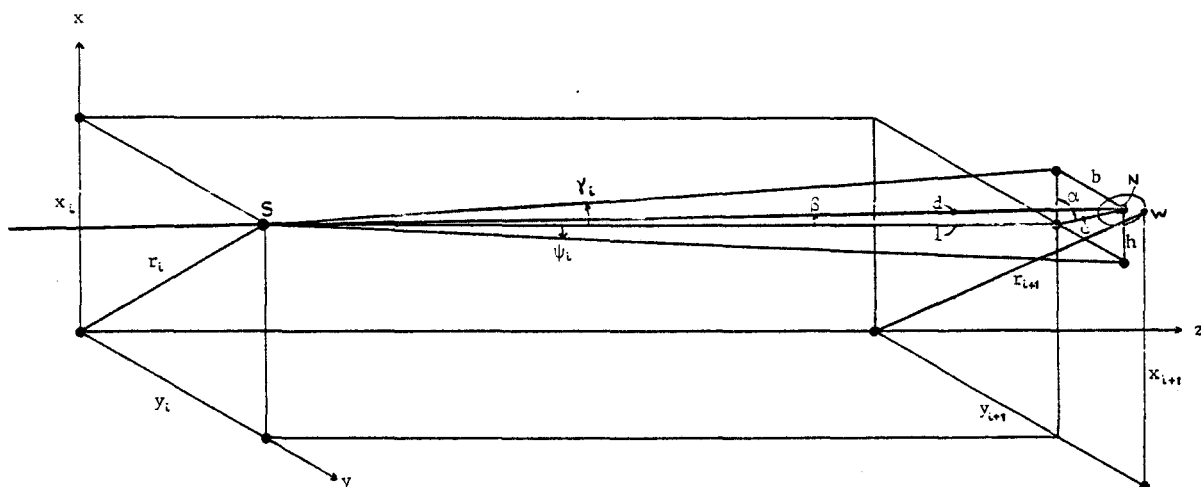


Fig. 4.4 Berekening van de positie van het proton op folie i+1 als er geen verstrooiing zou optreden.

Uit fig. 4.4 - 4.6 kunnen verschillende hoeken en afstanden, die bij de berekeningen gebruikt worden, bepaald worden.

Als we uitgaan van een proton dat op positie  $(x_i, y_i, z_i)$  (punt S) onder een hoek  $(\gamma_i, \Upsilon_i)$  op het verstrooiende folie (folie i) valt, dan geldt (zie fig 4.4):

$$h = l \cdot \tan \gamma_i$$

$$b = l \cdot \tan \Upsilon_i$$

$$c = \sqrt{b^2 + h^2}$$

$$d = \sqrt{l^2 + c^2}$$

$$\cos \beta = l/d$$

$$\sin \alpha = h/c$$

$$\cos \alpha = b/c$$

Hierin is l de afstand tussen folie i en folie i+1 en d de doorlopen afstand van folie i naar folie i+1.

Als  $\cos \beta$ ,  $\sin \alpha$ , en  $\cos \alpha$  bekend zijn kan berekend worden op welke positie het proton folie i+1 zou treffen als er geen verstrooiing zou optreden (punt N).

Het proton wordt echter wel verstrooid (verstrooiingshoeken  $\theta_i$  en  $\phi_i$ ) en treft folie i+1 in punt W (zie fig. 4.4 - 4.6). Kort en lang zijn de lengtes van de assen van de ellips die de kegel, opgespannen door  $\theta_i$ , afsnijdt in folie i+1.

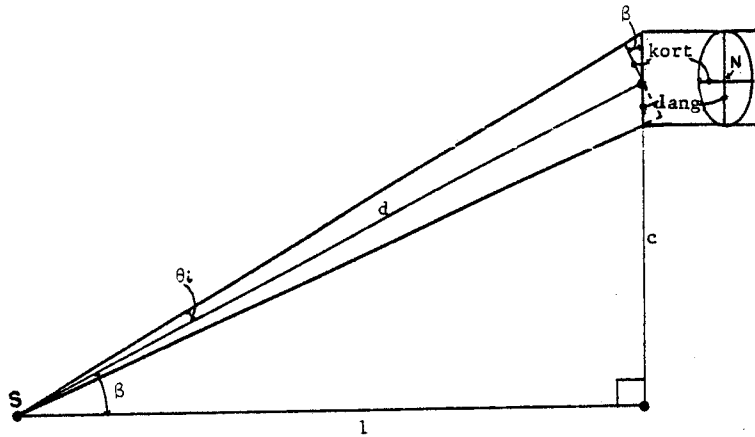


Fig. 4.5 Berekening de lengtes van de assen van de ellips die de kegel, opgespannen door verstrooihoek  $\theta_i$ , afsnijdt in folie  $i+1$

Voor kort en lang geldt:

$$\text{kort} = d \cdot \tan \theta_i$$

$$\text{lang} = d \cdot \tan \theta_i / \cos \beta$$

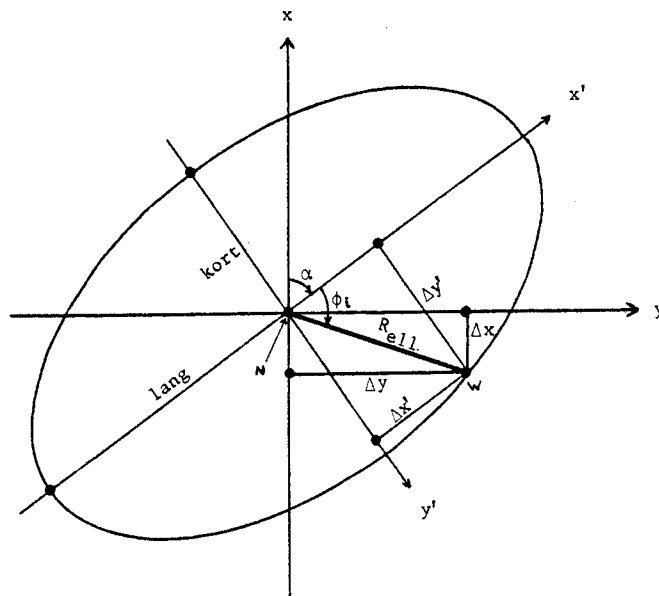


Fig. 4.6 Berekening van de coördinaten van punt W, het punt waar het proton, na verstrooiing in folie  $i$ , folie  $i+1$  treft.

Voor de coördinaten van punt W ( $x_{i+1}, y_{i+1}, z_{i+1}$ ) op folie  $i+1$  en de hoek waaronder het proton dit folie treft ( $\gamma_{i+1}, \Upsilon_{i+1}$ ) kan worden afgeleid (zie fig. 4.6):

$$R_{e11} = \text{kort}^2 / (1 - \varepsilon^2 \cos^2 \phi)$$

$$\varepsilon^2 = 1 - (\text{kort}^2 / \text{lang}^2) = 1 - \cos^2 \beta$$

$$\Delta x' = R_{e11} \cdot \cos \phi$$

$$\Delta y' = R_{e11} \cdot \sin \phi$$

$$\Delta x = \Delta x' \cdot \cos \alpha - \Delta y' \cdot \sin \alpha$$

$$\Delta y = \Delta x' \cdot \sin \alpha + \Delta y' \cdot \cos \alpha$$

$$x_{i+1} = x_i + h + \Delta x$$

$$y_{i+1} = y_i + b + \Delta y$$

$$z_{i+1} = z_i + l$$

$$\gamma_{i+1} = \arctan((h + \Delta x) / l)$$

$$\Upsilon_{i+1} = \arctan((b + \Delta y) / l)$$

#### 4.3.2 Het programma PROSIM

Een flowchart van het programma 'PROSIM' is gegeven in fig. 4.7. In appendix B is een listing van het programma afgedrukt.

Een korte toelichting bij het programma volgt hieronder.

Bij initialisatie 1 worden de random-generator geïnitieerd en enkele array's leeg gemaakt.

Bij initialisatie 2 worden de benodigde array's ingelezen en de gemiddelde energie in de 'opbrengst-folies' berekend.

De opbrengst-folies zijn die folies waarvan de gegevens van de protonenverdeling opgeslagen worden (maximaal 10 stuks).

De startpositie van een proton is normaal verdeeld met een standaarddeviatie  $\sigma_x$ . Als de afstand van de startpositie van het proton tot de as van de targethouder groter is dan  $R_{diafr}$ , dan bereikt dit proton het target niet en wordt daarom niet verder gevolgd. Ook een proton dat ter plaatse van een opbrengst-folie buiten het target komt wordt niet verder gevolgd (de straal van het target ter plaatse van de opbrengst-folies is vastgelegd in het array  $R_{afkap}$ ).

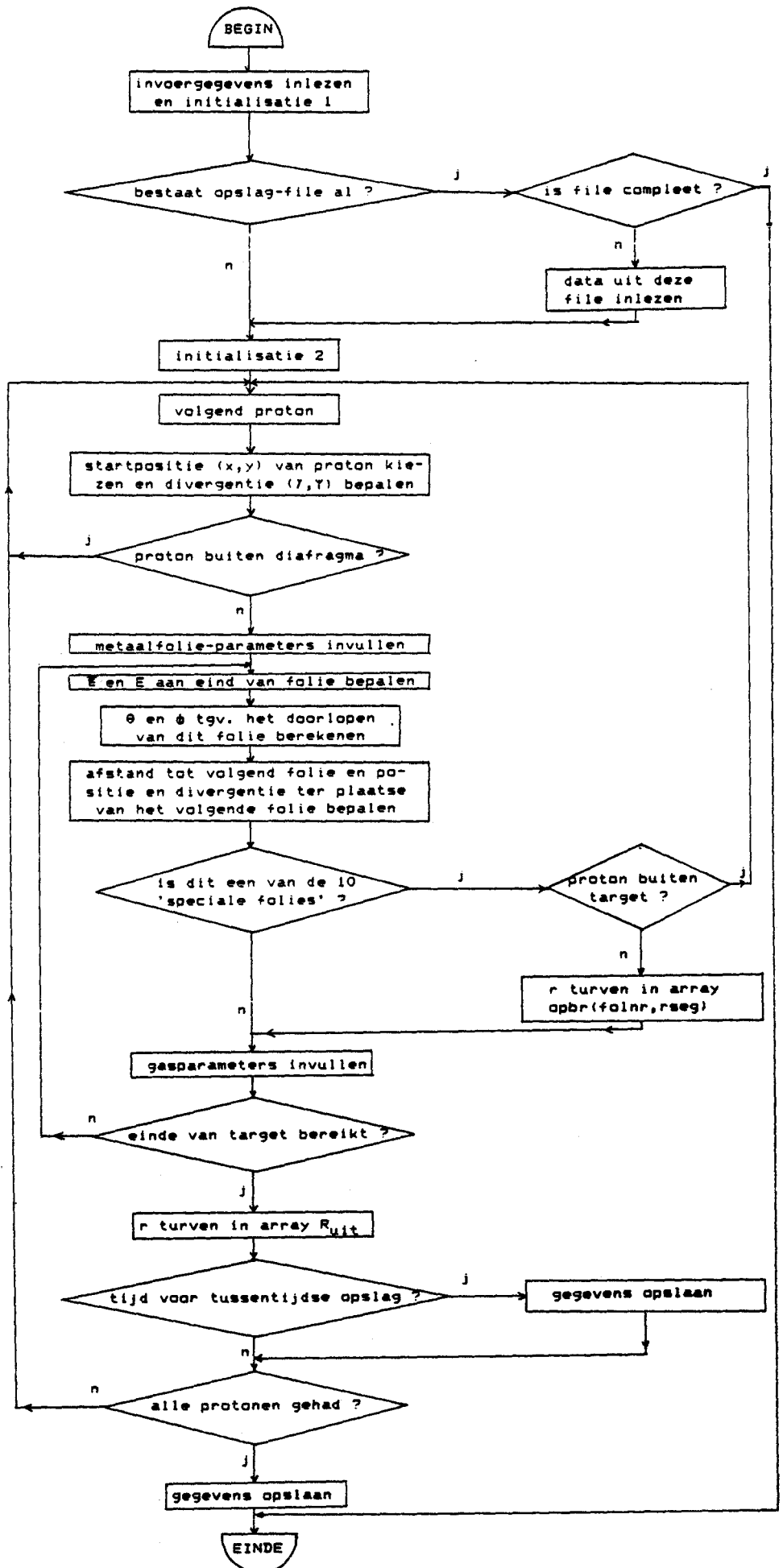


Fig.4.7 Flowchart van het programma PROSIM

Tijdens de uitvoering van het programma worden van tijd tot tijd alle relevante gegevens weggeschreven op disk, dit om te voorkomen dat alle informatie verloren gaat als het programma om enige reden voortijdig wordt afgebroken.

Als het programma gestart wordt, wordt eerst gekeken of er al een file bestaat met de 'opslag-filenaam'. Als deze file al bestaat en als blijkt dat nog niet alle protonen gelanceerd zijn, wordt alle data uit deze file ingelezen en wordt het programma vervolgd waar het blijkbaar voorheen afgebroken was.

In het programma wordt gebruik gemaakt van een aantal array's waarin grafieken in tabelvorm zijn opgeslagen (stopping power als functie van de protonenenergie,  $F_x^{-1}$  (zie appendix B),  $\sqrt{B}$  als functie van  $b$ ). Waar nodig wordt lineaire interpolatie toegepast.

#### 4.3.3 Parameters die van invloed zijn op de verstrooiing

De verstrooiing van een deeltje aan een folie wordt bepaald door de eigenschappen van het folie (ladingsgetal  $Z$ , atoom-massa  $A$ , dichtheid  $\rho$  en dikte  $d_l$ ) en door de eigenschappen van het te verstrooien deeltje (ladingsgetal  $z$ , massa  $M_0$  en gemiddelde energie  $E$ ) (zie § 4.2).

Omdat bij het programma PROSIM het gastarget wordt verdeeld in een aantal folies, worden een aantal extra parameters geïntroduceerd, die van invloed zijn op de resultaten van de berekening van de protonenverstrooiing.

Deze parameters zijn:

De stopping power van het targetmateriaal, om de gemiddelde energie van het deeltje in elk folie te bepalen, het aantal folies waarin het gastarget wordt opgedeeld,  $N_{folie}$ , en de ruimtelijke verdeling van de folies over de lengte van het target.

De berekende waarden voor de stopping power voor elementen in de natuurlijke samenstelling zijn getabelleerd (JAN 82). Voor verrijkte gassen moet een correctie toegepast worden (zie

appendix B).

$N_{\text{folie}}$  bepaalt de nauwkeurigheid waarmee de baan van het deeltje beschreven wordt: hoe groter  $N_{\text{folie}}$  is, hoe nauwkeuriger de baan en de energie van het deeltje op deze baan berekend wordt. De invloed van  $N_{\text{folie}}$  op de nauwkeurigheid waarmee de baan en de energie berekend wordt, wordt behandeld in appendix B.

De invloed van de ruimtelijke verdeling van de folies over de target-lengte is het sterkst merkbaar als  $N_{\text{folie}}$  klein is. Bij toenemende waarde van  $N_{\text{folie}}$  gaan de folies steeds meer op een continuüm lijken (mits de folies evenredig over de lengte verdeeld worden). Bij het comprimeren van een 'gas-compartiment' (§ 4.3.1) tot een 'gasfolie' is nog niet vastgelegd op welke positie in het compartiment het folie geplaatst wordt (aan het begin, in het midden, etc.). De protonenverstrooiing hangt af van de precieze positie van de gasfolies. De invloed van de precieze plaats van de folies is niet verder onderzocht, omdat bleek dat voor waarden van  $N_{\text{folie}} < \text{ca. } 100$  de protonenverdeling niet merkbaar veranderde als  $N_{\text{folie}}$  gevarieerd werd.

Omdat in het programma PROSIM de verstrooiing berekend wordt volgens een z.g.n. Monte-Carlo-methode zal een groot aantal protonen gelanceerd moeten worden om een goede indruk van de verstrooiing te krijgen. Aan de grafieken die gemaakt worden van de protonen-dichtheid als functie van de afstand tot de as van het target, kan men zien of  $N_{\text{prot}}$ , het aantal protonen dat gelanceerd wordt, groot genoeg gekozen is. Het blijkt dat een waarde van 16000 of 32000 voor  $N_{\text{prot}}$  goede resultaten oplevert (zie appendix B).

#### 4.4 Resultaten

In fig. 4.8 en 4.9 zijn de berekende bundelprofielen van verschillende Xe-targets weergegeven. In het vervolg worden, als gesproken wordt over Xe-targets, steeds  $^{124}\text{Xe}$ -targets bedoeld.

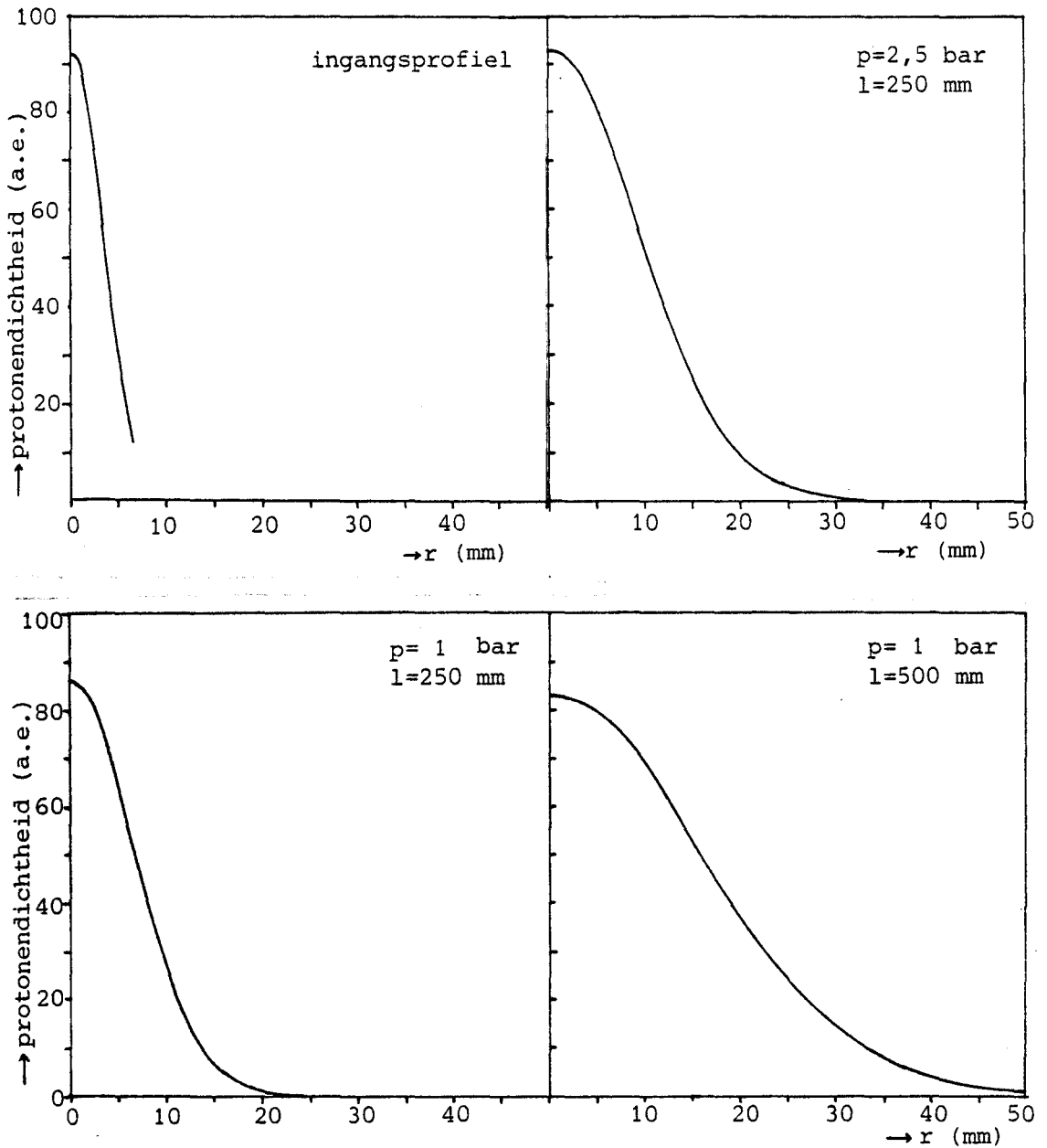


Fig. 4.8 Berekende bundelprofielen in verschillende Xe-targets. De druk p en de lengte l zijn in de figuren vermeld.



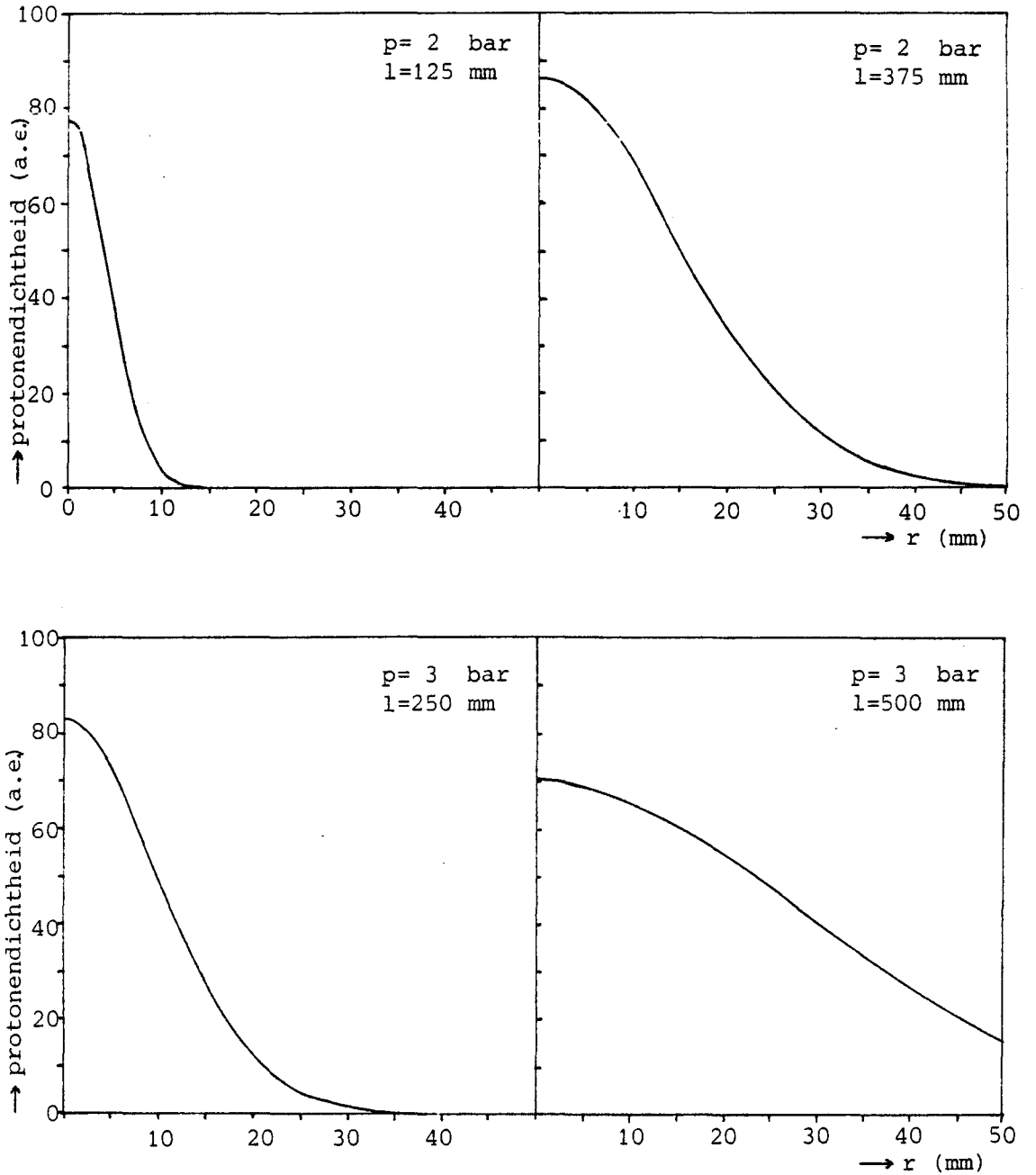


Fig. 4.9 Berekende bundelprofielen in verschillende Xe-targets. De druk  $p$  en de lengte  $l$  zijn in de figuren vermeld.

In tabel 4.10 zijn van een aantal Xe- en Kr-targets de FWHM-waarden van het bundelprofiel (breedte van het bundelprofiel op halve hoogte) aan het eind van het target vermeld. De verstrooiing in krypton-targets is berekend om vergelijking met experimenten mogelijk te maken.

target-gas	target-druk(bar)	target-lengte(mm)	FWHMuit (mm)
Xe	1	250	15,5
Xe	1	500	38
Xe	2	125	9,7
Xe	2	375	35
Xe	2,5	250	22
Xe	3	250	24
Xe	3	500	70
Kr	2	125	8,2
Kr	2	250	15,2
Kr	2	375	25
Kr	2	500	38
Kr	1	500	27
Kr	3	500	47
Kr	4	500	56

Tabel 4.10 Berekende FWHM bij verschillende Xe- en Kr-targets. De beginenergie van de protonen was 26 MeV bij de Xe-targets en 24 MeV bij de Kr-targets. De diameter van het diafragma was 13 mm en de FWHM van het ingangprofiel 7,3 mm.

#### 4.5 Vergelijking met experimentele resultaten

Op de TH Eindhoven zijn verschillende experimenten uitgevoerd om de protonenverstrooiing in gastargets (Kr,Xe) te bepalen (BOG 83, STE 84, MUL 85).

target-gas	target-druk (bar)	target-lengte (mm)	bundel-stroom ( $\mu$ A)	FWHM uit (mm)	experimentator
Kr	0	500	1	11.4	BOG 83
Kr	1	500	1	22.0	"
Kr	4	250	1	13.6	"
Kr	2	125	1*	8.5	STE 84
Kr	2	250	1*	11.2	"
Kr	2	375	1*	20.0	"
Kr	2	500	1*	31.0	"
Kr	2	500	10*	29.0	"
Kr	1	500	1*	21.5	"
Kr	3	500	1*	37.5	"
Kr	4	500	1*	43.5	"
Xe	2	375	1*	24.0	"
Xe	4	250	1*	27.5	"
Kr	2	125	1	7.5	MUL 85
Kr	2	250	1	11.1	"
Kr	2	375	1	20.2	"
Kr	2	500	1	30.3	"
Kr	1	500	1	21.4	"
Kr	3	500	1	37.7	"
Kr	4	500	1	43.8	"
Xe	2	375	1	28.2	"

Tabel 4.11 FWHM bij verschillende verstrooiingsexperimenten.

Bij alle experimenten was de beginenergie van de protonen 24 MeV, de diameter van het diafragma 13 mm en de FWHM van de invallende bundel ca. 7,2 mm.

\* Bij deze experimenten was slechts vermeld dat de bundelstroom bij 1 experiment 10 maal zo hoog was als bij de overige.

Bij deze experimenten werd de verdeling van de protonen bij het uittreden van het target bepaald door een Cu-folie te activeren. Via autoradiografie werd vervolgens uit de zwarting van een fotografische plaat (veroorzaakt door een contact-afdruk van het Cu-folie) het bundelprofiel bepaald. De resultaten van deze experimenten zijn weergegeven in tabel 4.11

In fig. 4.12 en 4.13 zijn als functie van de targetdruk en de lengte van het target de FWHM-waarden van de met het programma PROSIM berekende bundelprofielen aan het eind van een Kr-target uitgezet. Ter vergelijking zijn ook de resultaten van de protonenverstrooiing, die door Mulders (MUL 85) experimenteel bepaald zijn in deze figuren vermeld.

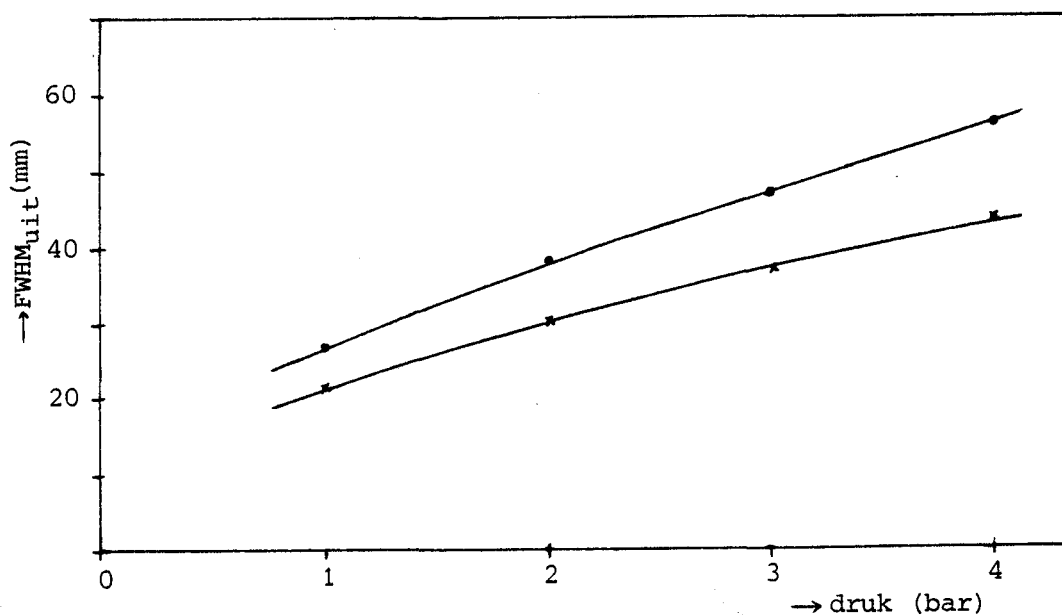


Fig. 4.12 FWHM van berekende bundelprofielen (•) en van experimenteel gemeten bundelprofielen (x) in verschillende Kr-targets als functie van de targetdruk. De lengte van alle targets is 500 mm.

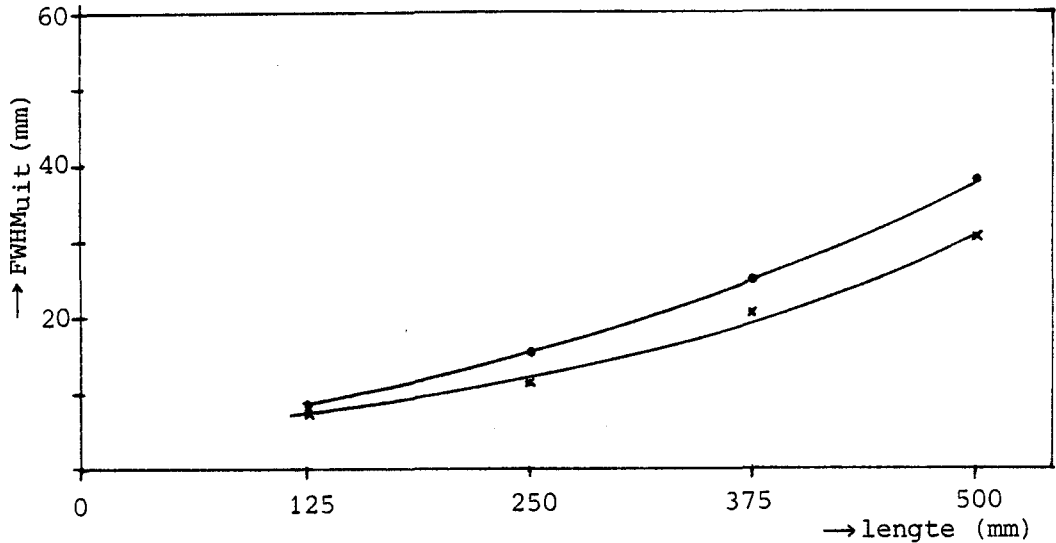


Fig. 4.13 FWHM van berekende bundelprofielen (•) en van experimenteel gemeten bundelprofielen (\*) in verschillende Kr-targets als functie van de lengte van het target. De druk van alle targets is 2 bar.

Bij het vergelijken van de bundelprofielen die verkregen zijn m.b.v. het programma PROSIM met de experimenteel gemeten bundelprofielen dient de volgende opmerking gemaakt te worden: bij het berekenen van de protonenverstrooiing zijn zoveel mogelijk dezelfde gegevens ingevoerd als die welke bij de experimenten gebruikt werden. Enkele parameters, zoals het ingangprofiel en de divergentie van de protonenbundel en de dichtheidsreductie in het gas-target, zijn niet exact bekend. Bij de berekening is een Gaussisch ingangprofiel met een standaarddeviatie van 3,1 mm gebruikt. Verder is aangenomen dat de bundel evenwijdig (divergentie= $10^{-6}$ ) invalt en dat er geen dichtheidsreductie optreedt (zie hoofdstuk 5). Vervolgens zijn de divergentie en dichtheidsreductie gevarieerd om te onderzoeken welke invloed deze parameters hebben op de verstrooiing. Een en ander wordt toegelicht in appendix B.

#### 4.6 Conclusies en discussie

Naar aanleiding van de met het programma PROSIM berekende protonenverstrooiing kunnen de volgende conclusies getrokken worden:

- De met het programma PROSIM berekende verstrooiing van protonen in een dun metaalfolie stemt goed overeen met de verstrooiing zoals die door Marion en Zimmerman (MAR 67) berekend is (in het geval van protonen van 10, 50 en 100 MeV, die verstrooid worden door een Ni-folie met een dikte van  $10 \text{ g/m}^2$ , zie appendix B).
- De berekende verstrooiing van protonen in een gastarget stemt kwalitatief gezien wel overeen met experimentele resultaten (zie fig. 4.14 en 4.15), maar wijkt kwantitatief af. Een mogelijke oorzaak van de kwantitatieve afwijking is dat in de gastargets die bij de experimenten gebruikt zijn t.g.v. de temperatuurverhoging een dichtheidsreductie optreedt (zie ook hoofdstuk 5). De berekende verstrooiing klopt kwantitatief wel goed met de experimenten als een dichtheidsreductie van ca. 35% wordt aangenomen. De berekende protonenverstrooiing komt ook overeen met de experimentele resultaten van een target dat ca. 15% korter is dan het target dat bij de berekening gebruikt is (zie fig 4.15).  
Er is bij de berekende verstrooiing uitgegaan van een evenwijdig invallende protonen-bundel. Een divergente bundel leidt in principe tot een grotere FWHM van het bundelprofiel, maar dit effect is in de praktijk (bij een reële waarde van de divergentie) verwaarloosbaar (zie appendix B).
- De verstrooiing van protonen in gas-targets met dezelfde lengte neemt ongeveer lineair toe met de target-druk (zie fig. 4.12)

- De protonenverstrooiing neemt sterk toe met de lengte van het target. Bij Kr- en Xe-targets neemt de toename van de FWHM van het bundelprofiel (t.o.v. de FWHM van het ingangsprofiel) bij benadering kwadratisch toe met de lengte van het target (zie fig. 4.13).
- De verstrooiing in een Xe-target is ongeveer even groot als de verstrooiing in een Kr-target dat dezelfde lengte heeft als het Xe-target, maar waarvan de druk 2 maal zo hoog is.

## 5 DE VORM VAN DE TARGETHOUDER

*In dit hoofdstuk wordt beschreven hoe uit de gegevens die verkregen worden m.b.v. het programma PROSIM een goede vorm voor de targethouder bepaald kan worden, rekening houdend met de protonenverstrooiing en met de vorm van de exitatiefuncties. Bovendien wordt ingegaan op de dichtheidsreductie die optreedt als een gastarget bestraald wordt bij een hoge bundelstroom.*

### 5.1 Inleiding

Als de dichtheid van het gas, de verdeling van de protonen in het target en de vorm van de exitatiefuncties bekend zijn kan een goede vorm voor de targethouder bepaald worden.

De vorm van de targethouder dient zodanig gekozen te worden dat bij de bestraling van een gegeven hoeveelheid target-gas met een bepaalde druk (bij een gegeven bundelstroom) een zo groot mogelijke opbrengst van het gewenste radionuclide (in ons geval  $^{123}\text{I}$ ) wordt verkregen.

De opbrengst is gedefiniëerd als de activiteit van het aange-  
maakte radionuclide per eenheid van lading die het target-  
folie passeert, gemeten op een bepaald tijdstip na een on-  
eindig korte bestraling. De opbrengst is afhankelijk van de  
dichtheid van het target-gas, de verrijkingsgraad van het  
gas, de vorm van de exitatiefuncties (= werkzame doorsnede  
als functie van de energie van het proton) en de vorm van de  
targethouder.

De dichtheid van het target-gas wordt bepaald door de druk  
van het gas en de dichtheidsreductie (die afhankelijk is van  
de druk en de vorm van het target en de bundelstroom). Aan de  
dichtheidsreductie wordt enige aandacht besteed in § 5.2.

De maximale druk waarbij het gastarget bestraald kan worden  
is afhankelijk van de sterkte van het target-folie en de  
grootte van de bundelstroom (BER 84).



De verrijgingsgraad dient bij voorkeur zo hoog mogelijk gekozen te worden om de opbrengst te verhogen en de hoeveelheid radionuclidische verontreiniging te beperken. Bij de keuze van de verrijgingsgraad dient men rekening te houden met de prijs en verkrijgbaarheid van verrijkt gas en de invloed van de ongewenste isotopen op de produktie van radionuclidische verontreinigingen.

De vorm van de exitatiefunctie(s) ligt vast. In § 5.5 wordt uitgebreider ingegaan op de exitatiefuncties.

De vorm van de targethouder is medebepalend voor de hoeveelheid gas die bestraald wordt en de efficiëntie waarmee dat gebeurt.

## 5.2 Dichtheidsreductie bij hoge bundelstromen

### 5.2.1 Inleiding

Als een gastarget bestraald wordt bij een hoge bundelstroom, treedt dichtheidsreductie op. Dichtheidsreductie is het effect waarbij de dichtheid van het gas op de as van het target gereduceerd wordt, en omdat de gemiddelde dichtheid uiteraard constant is, de dichtheid bij de wand van de targethouder vergroot wordt. Omdat het centrale deel van het target het meest interessante deel is wordt v.n.l. dit gedeelte beschouwd, vandaar de term dichtheidsreductie.

De dichtheidsreductie leidt o.a. tot een vergroting van de range (gemeten in m) van de geladen deeltjes in het targetgas en tot een verlaging van de opbrengst aan radionucliden.

De range kan bepaald worden door de bundel in het target te fotograferen. Bovendien kan de range als functie van de druk van het gas bepaald worden door de druk van het targetgas zover te verhogen, dat geen stroom meer gemeten wordt aan het einde van het target.

Er is op verschillende plaatsen onderzoek verricht naar de dichtheidsreductie van het targetgas bij hoge bundelstromen.

In deze paragraaf wordt een samenvatting gegeven van de resultaten van een aantal van deze experimenten.

Oselka, Gindler en Friedman (OSE 77) vonden dat de  $^{15}\text{O}$ -opbrengst bij bestraling van  $\text{N}_2$ -gas met deutronen niet evenredig is met de targetdruk of de bundelstroom.

Bij een gasdruk van 2,4 bar en een bundelstroom van  $15 \mu\text{A}$  vonden zij een specifieke opbrengst (opbrengst per ml S.T.P. gas), die 50% was van de specifieke opbrengst bij  $5 \mu\text{A}$  en 2,4 bar, en slechts 30% van die bij  $2 \mu\text{A}$  en 0,7 bar.

Blijkbaar worden de gasmoleculen uit het bundelvolume naar buiten gedreven. Mogelijke oorzaken die zij hiervoor noemen zijn:

- Door de hoge temperatuur in het bundelvolume zet het gas uit en vermindert de dichtheid ter plaatse van de bundel.
- Er ontstaat een hoge plasmadruk in het bundelvolume.
- Door ionisaties ontstaat een elektrische afstoting van de moleculen.

Mulders (MUL 84) heeft bij het bestralen van Kr-gas met 24 MeV protonen de opbrengst-reductie als functie van de targetdruk en de bundelstroom gemeten. Bij een stroom van  $15 \mu\text{A}$  vond hij een opbrengst-reductie van 12 tot 17 % bij targetdrukken van 0,5 tot 4 bar t.o.v. bestralingen bij met lage bundelstroom ( $1 \mu\text{A}$ ).

Heselius, Lindblom en Solin (HES 82) hebben het gastarget tijdens een bestraling gefotografeerd. De dichtheidsreductie werd afgeleid uit de vergroting van de range. Bij het bestralen van Ne en Ar vonden zij een asymmetrische dichtheidsreductie t.g.v. gastransport in opwaartse richting (de dichtheid in het bovenste deel van het target is lager dan in het onderste deel, zie ook SOL 84). Bij He trad geen asymmetrie op, waarschijnlijk door het grote warmtegeleidingsvermogen van He.

Bij 17,7 MeV  $\alpha$ -deeltjes op een Ar-target met een diameter van 3 cm en een begindruk van 6,75 bar vonden zij, bij een bundelstroom van  $6 \mu\text{A}$  een dichtheidsreductie van 10 tot 15%.

Bij een Ne target was de reductie zelfs 23 %.

M.b.v. een interferometrische opstelling werd een schatting gemaakt van de temperatuur van het gas in het bundel. Bij het bestralen van 6,75 bar Ar met 17,7 MeV  $\alpha$ -deeltjes vonden zij bij een bundelstroom van 2  $\mu$ A een maximale temperatuur van 350 K, en bij een stroom van 6  $\mu$ A 500 K.

Vandewalle en Vandecasteele (VAN 83) vonden bij het bestralen van een N<sub>2</sub> target met een druk van 9 bar en een diameter van 5 tot 8 cm een dichtheidsreductie van 15 tot 35% bij een protonen-bundelstroom van 15  $\mu$ A. Zij bepaalden de druk die nodig was om de protonen volledig af te remmen, als functie van de bundelstroom.

Wieland, Schlyder en Wolf (WIE 84) ontwikkelden een mathematisch model waarbij het temperatuurprofiel werd gefit aan experimentele metingen aan neon-targets met een lengte van 10 cm en een diameter van 2,5 cm. Afhankelijk van de bundelstroom van 14,1 MeV deuteronen werd bepaald welke druk nodig was om de deuteronen volledig te stoppen. Deze druk varieerde van 34 bar bij een bundelstroom van 5  $\mu$ A tot 45 bar bij 15  $\mu$ A. De maximale bundeltemperaturen die hierbij berekend werden waren 483 resp. 637 K, corresponderend met een dichtheidsreductie van 27 resp. 35 %.

### 5.2.2 Vergelijkingen voor het warmtetransport

De dichtheidsreductie is afhankelijk van de temperatuur in het target. De energie die door de protonen in het target wordt afgegeven leidt tot een temperatuurverhoging. Door deze temperatuurverhoging ontstaat een warmtetransport in de richting van de wand van de targethouder (die gekoeld wordt). Het warmtetransport geschiedt via 3 mechanismen: geleiding, vrije convectie en straling en wordt beschreven door de volgende vergelijkingen (COR 77, WEL 78):

$$Q = -\lambda A \nabla T \quad (\text{geleiding}) \quad (5.1)$$

$$Q = hA(T_{\text{gas}} - T_{\text{wand}}) \quad (\text{vrije convectie}) \quad (5.2)$$

$$Q = \varepsilon dA(T_{\text{gas}}^4 - T_{\text{wand}}^4) \quad (\text{straling}) \quad (5.3)$$

hierin is :

T = temperatuur (K)

Q = gedissipeerd vermogen in het target (W)

A = oppervlak waardoor het warmtetransport plaats vindt (m<sup>2</sup>)

$\lambda$  = warmtegeleidingscoëfficiënt (WK<sup>-1</sup>m<sup>-1</sup>)

h = warmteoverdrachtscoëfficiënt (WK<sup>-1</sup>m<sup>-2</sup>)

d = constante van Stefan-Bolzman (5,676.10<sup>-8</sup> WK<sup>-4</sup>m<sup>-2</sup>)

$\varepsilon$  = emissiviteit van de wand van de targethouder

De grootte van de warmteoverdrachtscoëfficiënt kan bepaald worden uit de relatie tussen de volgende dimensieloze getallen:

$$Pr = \mu C_p / \lambda \quad (5.4)$$

$$Gr = \beta g g^2 D^3 \Delta T / \mu^2 \quad (5.5)$$

$$Nu = hD / \lambda \quad (5.6)$$

waarin :

Pr = getal van Prandtl (vrijwel temperatuur-onafhankelijk)

Gr = getal van Grashof

Nu = getal van Nusselt

$\mu$  = dynamische viscositeit (Pa.s)

C<sub>p</sub> = warmtecapaciteit bij constante druk (Jkg<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup>)

$\lambda$  = warmtegeleidingscoëfficiënt (WK<sup>-1</sup>m<sup>-1</sup>)

$\beta$  = thermische uitzettingscoëfficiënt (K<sup>-1</sup>)

g = zwaartekrachtversnelling (9,8 ms<sup>-2</sup>)

g = dichtheid (kg/m<sup>3</sup>)

D = lineaire afmeting (diameter van de targethouder) (m)

$\Delta T$  = temperatuurverschil (K)

h = warmteoverdrachtscoëfficiënt (WK<sup>-1</sup>m<sup>-2</sup>)

Bij vrije convectie geldt (COR 77, WEL 78):

$$\text{Nu} = 0,53(\text{Pr.Gr})^{1/4} \quad , \text{ als } 10^4 < \text{Pr.Gr} < 10^9 \quad (5.7)$$

$$\text{Nu} = 0,13(\text{Pr.Gr})^{1/3} \quad , \text{ als } \text{Pr.Gr} > 10^9 \quad (5.8)$$

De warmteoverdrachtscoëfficiënt  $h$  volgt uit:

$$h = (\lambda/D) \cdot \text{Nu} \quad (5.9)$$

Door Cornwell (COR 77) wordt voor een aantal 'systemen' aangegeven welk mechanisme de grootste bijdrage levert tot het warmtetransport. Twee van deze systemen zijn enigszins te vergelijken met een gas-target dat opgewarmd wordt door een smalle protonenbundel: een metalen staf, omgeven door een metalen cylinder, waarbinnen vacuüm heerst, en een metalen staf omgeven door lucht. De belangrijkste warmte-transport-mechanismen voor deze 2 systemen zijn resp. straling en vrije convection.

Verwacht kan worden dat deze mechanismen ook de grootste bijdrage in het warmtetransport leveren in de situatie van een gastarget dat opgewarmd wordt door een protonenbundel.

### 5.2.3 Toepassing op gastargets

Er is een grove schatting gemaakt van de bijdrage van de 3 warmtetransport-mechanismen voor een aantal xenon- en krypton-targets. Hierbij is uitgegaan van een sterk vereenvoudigd model voor het target en de warmtebron (de protonenbundel). Er wordt geen rekening gehouden met protonenverstrooiing (waardoor de bundel breder wordt). De geometrie waarvoor de schatting gemaakt is is afgebeeld in fig. 5.1. Warmtetransport in axiale richting wordt verwaarloosd. Verder is aangenomen dat het gas een homogene temperatuur  $T_D$  heeft terwijl de wand op een constante temperatuur  $T_W$  van 300K wordt gehouden. De oplossing van de differentiaalvergelijking voor het geleidingsmechanisme in deze situatie is:

$$Q = 2\pi\lambda l(T_D - T_W) / \ln(R_{\text{target}}/R_{\text{bundel}}) \quad (5.10)$$

$R_{\text{target}}$  en  $R_{\text{bundel}}$  zijn de stralen van de targethouder resp.

de bundel. Het geleidingsmechanisme leidt tot een vrijwel parabolisch temperatuurprofiel in het gas. De gemiddelde gas-temperatuur  $T_g = (T_b + T_w)/2$ .

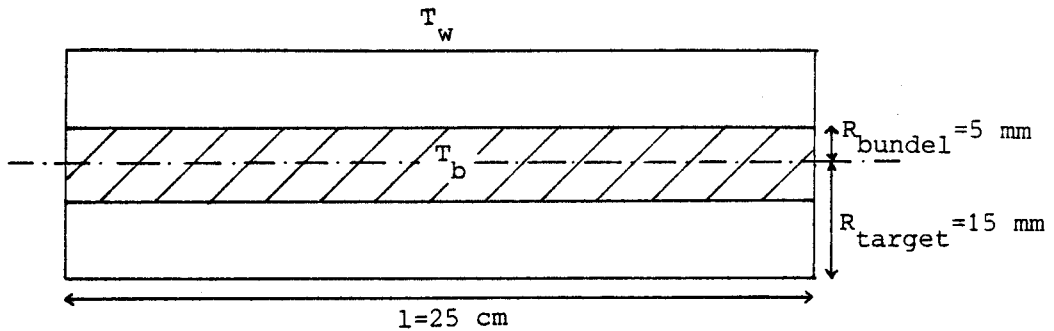


Fig. 5.1 Geometrie die gebruikt is bij het afschatten van de grootte van het warmtetransport.

In de dimensieloze getallen komen de grootheden  $D$  en  $\Delta T$  voor. Voor  $D$  wordt in het vervolg de diameter van de targethouder ( $2 \cdot R_{\text{target}}$ ) gekozen, voor  $\Delta T$  het verschil tussen de gemiddelde gas-temperatuur ( $T_g$ ) en de temperatuur van de wand van de targethouder ( $T_w$ ).

De grootte van de emissiviteit  $\epsilon$  wordt bepaald door de gladheid van het oppervlak van de targethouder. Bij een spiegelend (nikkel-) oppervlak is  $\epsilon$  ongeveer gelijk aan 0,07-0,1, bij een geoxideerd oppervlak is  $\epsilon \approx 0,4-0,7$ . In de hierna volgende rekenvoorbeelden wordt voor  $\epsilon$  een waarde van 0,2 aangenomen (deze waarde is als een soort gemiddelde gekozen omdat de gladheid van het oppervlak niet bekend is). Voor de emissiviteit van het gas is een waarde 1 genomen.

Uitgaande van verschillende gemiddelde gas-temperaturen en target-drukken is voor elk van de mechanismen een schatting gemaakt van de grootte van de vermogen ( $Q$ ) dat in het target gedissipeerd moet worden om deze temperatuur te handhaven

(aangenomen dat alle warmte via één mechanisme wordt afgevoerd). De resultaten voor enkele xenon- en krypton-targets zijn vermeldt in tabel 5.2.

nr	gas	druk (bar)	$T_g$ (K)	Q t.g.v. geleiding	Q t.g.v. convectie	Q t.g.v. straling	Q totaal
1	Xe	1	400K	2,1	10,8	4,7	17,6
	Xe	1	500K	5,1	26,4	14,5	46,0
	Xe	1	700K	13,8	67,9	62,0	144,0
	Xe	1	1100K	40,3	173,4	389,0	602,0
2	Xe	4	400K	2,1	21,6	4,7	28,4
	Xe	4	500K	5,1	52,8	14,5	72,1
	Xe	4	700K	13,8	135,8	62,0	211,0
	Xe	4	1100K	40,3	346,8	389,0	776,0
3	Kr	1	400K	3,5	12,5	4,7	20,8
	Kr	1	500K	8,5	30,6	14,5	53,6
	Kr	1	700K	22,4	75,4	62,0	160,0
	Kr	1	1100K	62,9	184,7	389,0	636,0
4	Kr	4	400K	3,5	25,0	4,7	33,2
	Kr	4	500K	8,5	61,3	14,5	84,3
	Kr	4	700K	22,4	150,8	62,0	235,0
	Kr	4	1100K	62,9	369,5	389,0	821,0

Tabel 5.2 Warmtedissipatie (in Watt) bij verschillende gemiddelde gas-temperaturen ( $T_g$ ) in verschillende xenon- en krypton-targets. De temperatuur van de wand,  $T_w$ , is 300K. De warmtedissipatie bij een bundelstroom van 30  $\mu$ A is in de 4 targets resp. 49, 201, 42 en 155 W\*. De gemiddelde gastemperaturen die hiermee corresponderen zijn 510, 690, 465 resp. 610 K.

\* Dit zijn maximale waarden, indien geen dichtheidsreductie optreedt (bij 10% dichtheidsreductie is de warmtedissipatie ook ca. 10% lager).

Het is mogelijk dat de geschatte waarden voor de warmtedissipatie sterk afwijken van de werkelijke waarden wegens de sterke vereenvoudiging van het bundelprofiel en de onzekerheid in de waarde van de parameter  $\epsilon$ . Toch mag verondersteld worden dat het warmtetransport voornamelijk zal plaats vinden door vrije convectie en straling.

In een Xe-target met een lengte van 25 cm en een druk van 2,5 bar wordt, bij een bundelstroom van  $30 \mu\text{A}$ , ca. 135 W gedissipeerd. Er kan berekend worden dat dit correspondeert met een gemiddelde gas-temperatuur van ca. 640 K. Dit correspondeert met een drukverhoging van ca. 110%. Tijdens routinebestralingen van een Xe-target met vergelijkbare afmetingen wordt een drukverhoging van ca. 90% gemeten bij een bundelstroom van  $30 \mu\text{A}$ , hetgeen vrij goed overeenstemt met bovenstaande theoretische schatting.

Als aangenomen wordt dat de schatting van de temperatuur van de bundel (ca. 600K) juist is, dan betekent dit dat er een vrij grote dichtheidsreductie kan optreden, afhankelijk van het temperatuurprofiel: bij een vlak temperatuurprofiel treedt geen dichtheidsreductie op, bij een parabolisch profiel is de dichtheidsreductie ca. 33%.

Geconcludeerd mag worden dat in gas-targets een vrij grote dichtheidsreductie kan optreden bij hoge bundelstromen. Een schatting van de grootte is echter moeilijk te maken omdat de bijdragen tot het warmtetransport t.g.v. vrije convectie en straling niet goed bekend zijn. Bovendien moet rekening gehouden worden dat aan het einde van het target meer warmte gedissipeerd wordt dan aan het begin omdat de stopping power toeneemt als de energie van het proton afneemt.

Ten gevolge van de dichtheidsreductie neemt de opbrengst per (bar)ml gas af, en dus moet voor een gelijke opbrengst de druk van het gas worden verhoogd of de lengte van het target worden vergroot (er moet dus meer gas bestraald worden).



### 5.3 Principe van het bepalen van de vorm van de targethouder

Bij het bepalen van de vorm van de targethouder wordt uitgegaan van de met het programma PROSIM berekende verstrooiing in een groot target. Dit target heeft een diameter van 100 mm en een zodanige lengte, dat de energie aan het eind van het target kleiner is dan ca. 15 MeV (de werkzame doorsnede is dan verwaarloosbaar).

Het gedeelte van het target dat het meest efficiënt gebruikt wordt voor de produktie van radionucliden is het gedeelte waar de opbrengstdichtheid (de opbrengst per volume-eenheid) het hoogst is, ofwel daar waar het product van protonendichtheid en werkzame doorsnede maximaal is (zie ook hoofdstuk 3). Er wordt bij het bepalen van de vorm van de targethouder vooralsnog geen rekening gehouden met dichtheidsreductie omdat de grootte hiervan o.a. afhankelijk is van de vorm van de targethouder, die juist bepaald moet worden.

Bij het bepalen van de vorm van de targethouder bij een bepaald target-volume en een bepaalde druk wordt gezocht naar z.g.n. equi-opbrengstdichtheids-vlakken (of in een 2-dimensionale beschrijving equi-opbrengstdichtheids-lijnen). Een equi-opbrengstdichtheids-vlak (-lijn) is een verzameling punten waar de opbrengst per volume-eenheid dezelfde grootte heeft (zie fig. 5.4).

Door de targethouder in de vorm van een equi-opbrengstdichtheids-vlak te kiezen kan de maximale opbrengst bij een bepaald target-volume verkregen worden (zie fig. 5.5).

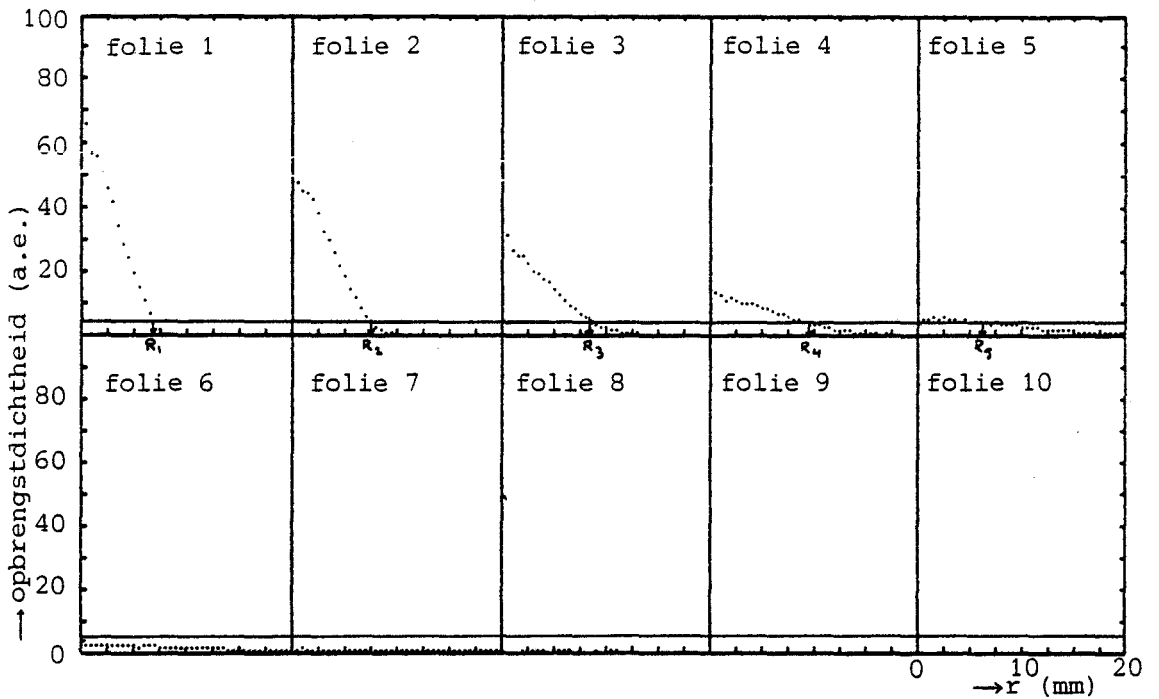


Fig. 5.4 Berekening van de vorm van de targethouder (1)

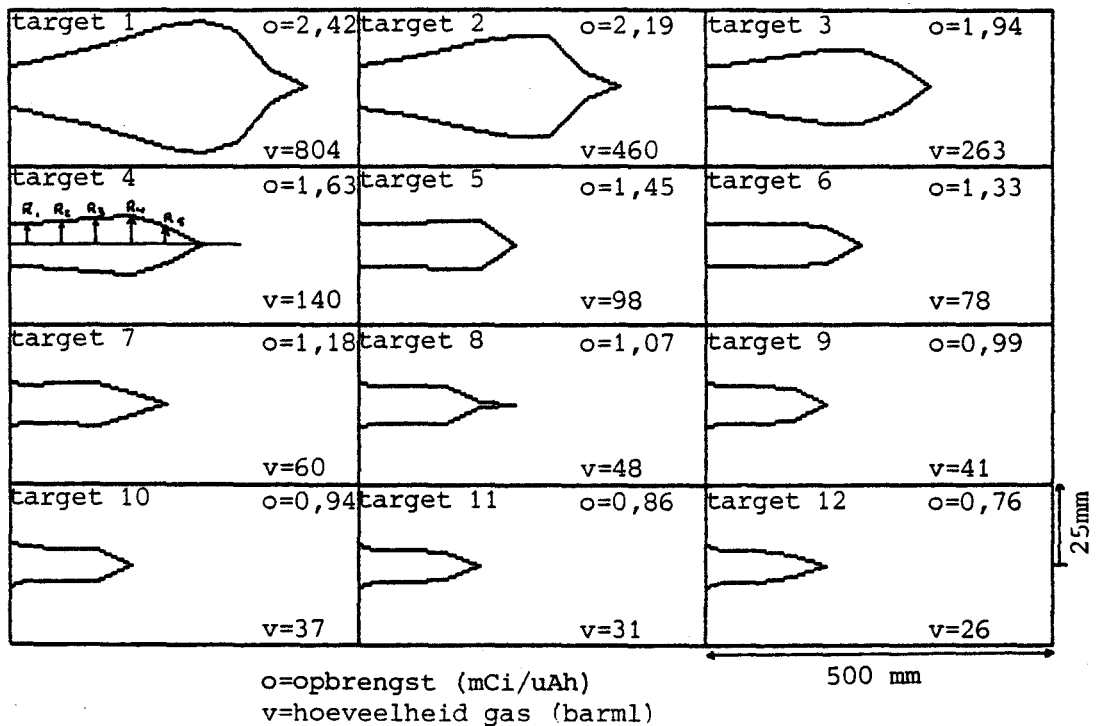


Fig. 5.5 Berekening van de vorm van de targethouder (2)  
 Target 4 correspondeert met de getrokken lijnen in fig. 5.4.

#### 5.4 Het programma PROGRA

Er is een programma PROGRA geschreven, waarmee, uitgaande van de gegevens die berekend zijn met het programma PROSIM en de exitatiefuncties voor de reacties op  $^{124}\text{Xe}$ , grafieken kunnen worden gemaakt van de opbrengstdichtheid in een 'gas-folie' als functie van de afstand tot de as van het target. Deze grafieken worden gemaakt voor 10 gas-folies, verspreid over de lengte van het target (zie fig. 4.2 en 5.4).

M.b.v. deze grafieken worden 12 equi-opbrengstdichtheidslijnen berekend. Om een equi-opbrengstdichtheidslijn te berekenen wordt in de 10 bovengenoemde grafieken gezocht naar de straal waarbinnen de opbrengstdichtheid groter is dan een bepaalde waarde (b.v.  $10 \text{ mCi}/\mu\text{Ah.ml}$ ). Aan de hand van deze 10 berekende stralen (voor elk gasfolie één) kan een omhullende van een targethouder geconstrueerd worden.

Op deze wijze worden de omhullenden van 12 targethouders, die de optimale vorm bij een bepaald volume hebben, berekend (één voor elke equi-opbrengstdichtheidslijn, zie fig. 5.4 en 5.5).

Als de 10 target-vormen berekend zijn kunnen grafieken getekend worden waarbij de opbrengst of de specifieke opbrengst bij de optimale vorm van de targethouder is uitgezet als functie van de hoeveelheid gas die bestraald wordt (zie fig. 5.6 en 5.7).

Een listing van het programma PROGRA is opgenomen in appendix C.

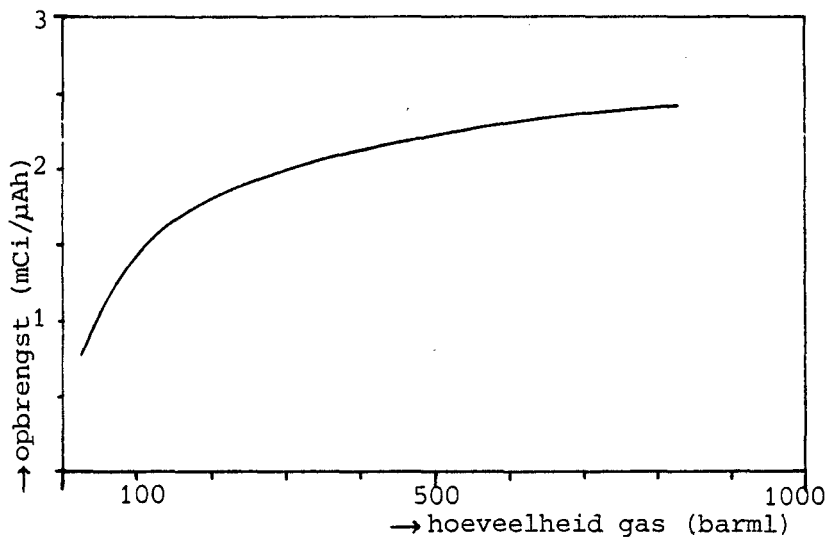


Fig. 5.6 Totale opbrengst als functie van de hoeveelheid gas die bestraald wordt, bij een targetdruk van 3 bar.

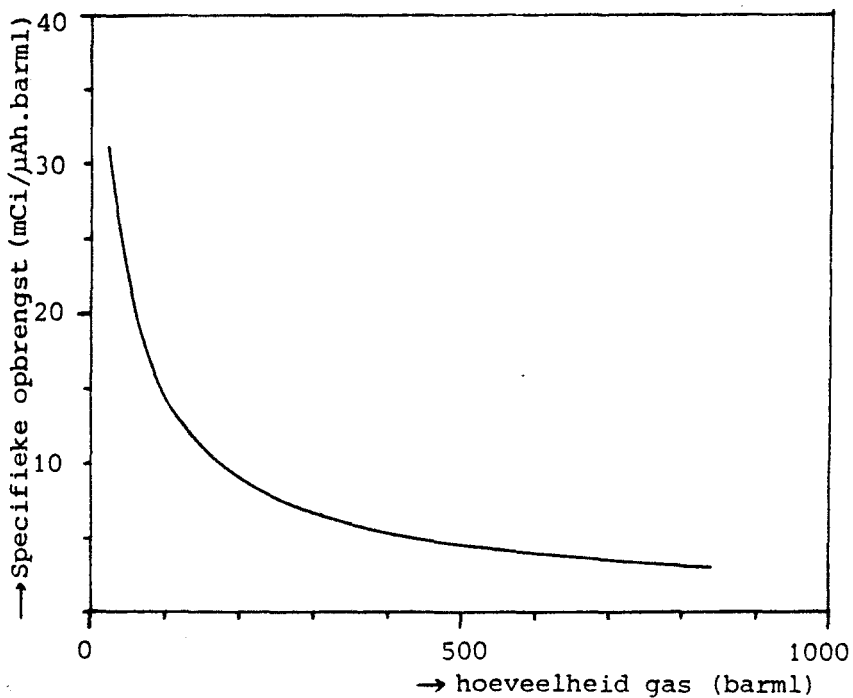


Fig. 5.7 Specifieke opbrengst als functie van de hoeveelheid gas die bestraald wordt, bij een targetdruk van 3 bar.

Bij de keuze van een target kunnen de hoeveelheid gas (in barml) en de druk van het target-gas nog gevarieerd worden.

Om een hoge opbrengst te verkrijgen moet men een breed, lang target gebruiken. Vanwege het grote volume is de specifieke opbrengst (het quotiënt van de opbrengst en de hoeveelheid gas, uitgedrukt in mCi/ $\mu$ Ah.barml) dan echter laag.

Om een hoge specifieke opbrengst te verkrijgen moet een kort, smal target met een hoge druk gekozen worden (met kort wordt hier bedoeld: zo lang dat de protonen afgeremd worden tot een energie waarbij de werkzame doorsnede sterk afgenomen is). In dit target is de totale opbrengst echter laag, vanwege het kleine volume (zie fig. 5.6 en 5.7).

Bij het bepalen van de uiteindelijke vorm van de targethouder moet gezocht worden naar een voldoende hoge opbrengst bij en zo hoog mogelijke specifieke opbrengst. De maximale targetdruk wordt hierbij bepaald door de sterkte van het targetfolie en de grootte van de bundelstroom, en de hoeveelheid target-gas door de hoeveelheid geld die men bereid is hierin te investeren.

### 5.5 De excitatie-functies

De vorm van de excitatiefuncties voor de reacties op  $^{124}\text{Xe}$ , die gebruikt zijn zijn die, zoals die berekend zijn door Berkers en Jonkers (BER 84) volgens de methode van Keller (KEL 73). De absolute waarde wordt verkregen door vermenigvuldiging met een constante (0,68), zodanig dat de opbrengstberekeningen overeenstemmen met de experimenteel gemeten opbrengst bij routinematige produktie van  $^{123}\text{I}$ .

De excitatiefuncties die gebruikt zijn worden in tabelvorm opgeslagen in arrays.

In fig. 5.8 zijn de excitatiefuncties in grafiek-vorm weergegeven, in appendix C in tabel-vorm.

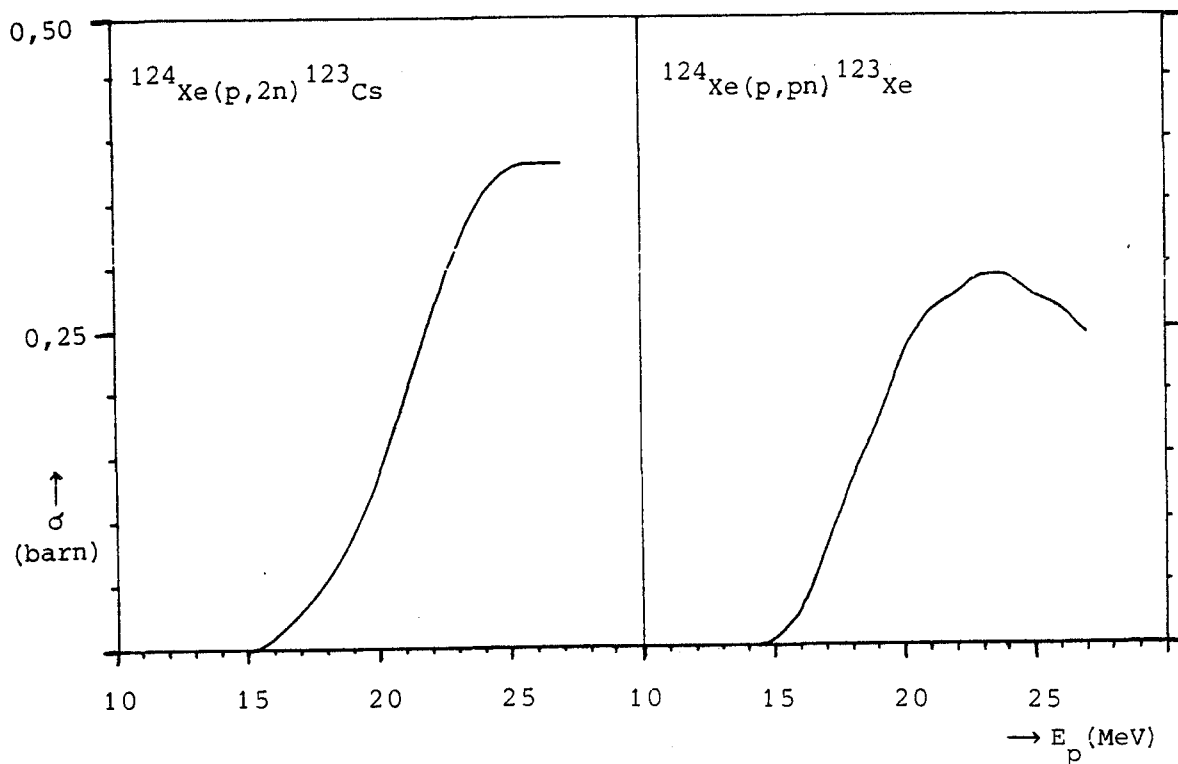


Fig. 5.8 Excitatiefuncties voor de reacties  $^{124}\text{Xe}(p,2n)^{123}\text{Cs}$  en  $^{124}\text{Xe}(p,pn)^{123}\text{Xe}$ . De werkzame doorsnede wordt uitgedrukt in barn:  $1 \text{ barn} = 10^{-28} \text{ m}^2$ .

### 5.6 Resultaten

In fig. 5.9 en 5.10 zijn de maximale opbrengst van  $^{123}\text{I}$  (die verkregen wordt als vóór de vorm van de targethouder een equi-opbrengstdichtheids-vlak gekozen wordt) als functie van de gashoeveelheid bij verschillende drukken, en als functie van de druk bij verschillende gashoeveelheden weergegeven. Er is hierbij uitgegaan van 99,8% verrijkt  $^{124}\text{Xe}$ , overeenkomstig de waarde die bij de routine-productie gebruikt wordt. Met de targetdruk wordt in dit geval de 'vuldruk' bedoeld: tijdens de bestraling zal de druk t.g.v. de temperatuurstijging hoger worden dan de vuldruk (zie § 5.7).

De maximale opbrengst\*, die verkregen wordt bij een target waarin alle protonen in het gas gestopt worden, is 3,0 mCi/ $\mu\text{Ah}$ .

\* Met opbrengst wordt in het vervolg steeds bedoeld: de  $^{123}\text{I}$ -opbrengst bij een korte bestraling, gemeten op 34 uur na EOB.

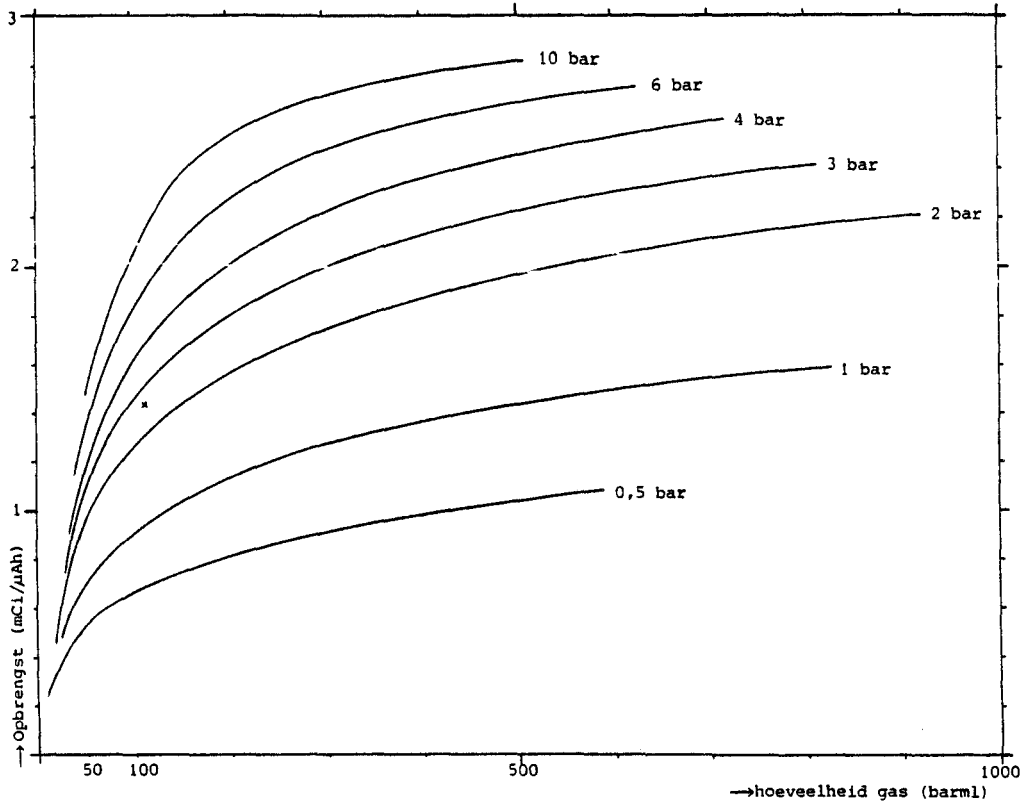


Fig. 5.9 Maximale opbrengst als functie van de hoeveelheid gas die bestraald wordt, bij verschillende targetdrukken.

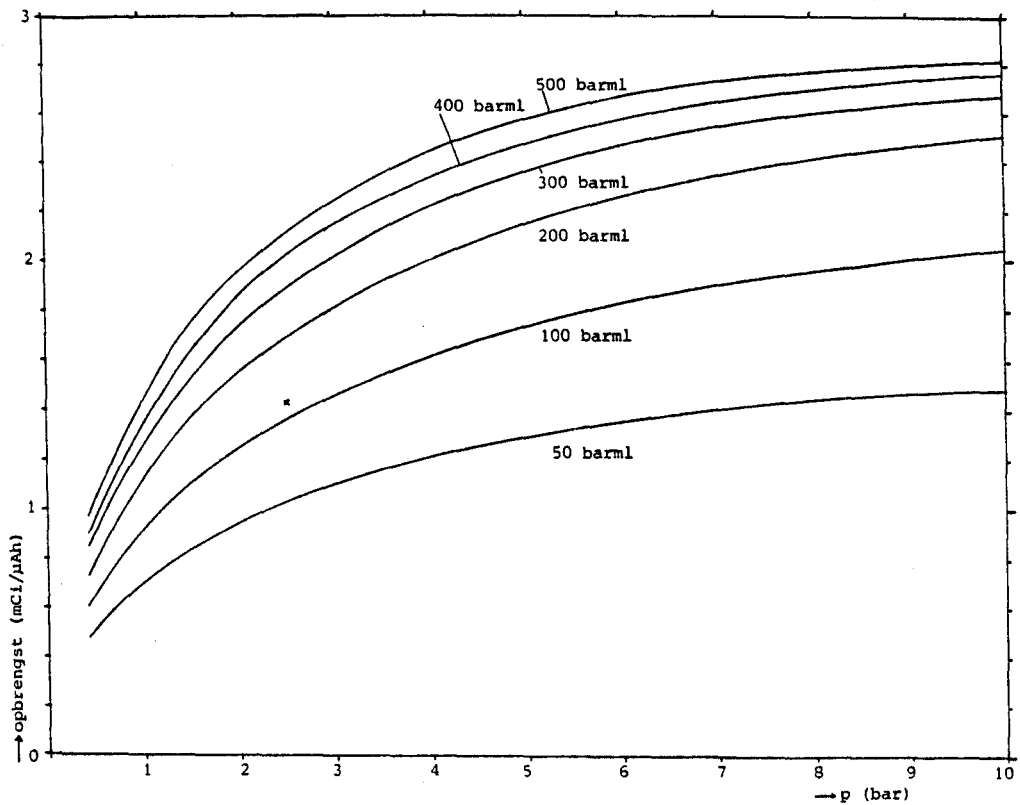


Fig. 5.10 Maximale opbrengst als functie van de targetdruk, bij verschillende gas-hoeveelheden.

### 5.7 Conclusies en discussie

Enkele conclusies die naar aanleiding van het voorafgaande getrokken kunnen worden zijn:

- In het algemeen kan gesteld worden dat een goede vorm van een targethouder een cylinder is die (bij niet te kleine targets) aan het begin geleidelijk breder en aan het eind geleidelijk smaller wordt (zie fig. 5.5).
- De maximale opbrengst, die verkregen wordt bij een target waarin alle protonen in het gas gestopt worden, is 3,0 mCi/ $\mu$ Ah.
- De opbrengst bij een bepaalde hoeveelheid gas neemt toe met de targetdruk (zie fig. 5.10).
- De specifieke opbrengst neemt sterk af bij een toenemende hoeveelheid gas. Zo is bv. de opbrengst van een target dat 500 barml gas bevat slechts ca. 2 maal zo groot als die van een target dat 50 barml bevat (zie fig. 5.9).

Bij de keuze van het target spelen de volgende grootheden een rol:

- de bundelstroom
- de targetdruk
- de dikte van het targetfolie
- de hoeveelheid gas die bestraald wordt

Deze grootheden zijn niet onafhankelijk van elkaar te kiezen. Omdat de protonen in het targetfolie een gedeelte van hun energie afstaan, warmt het folie op. Als het folie te warm wordt (doordat te veel energie in het folie gedissipeerd wordt) neemt de barstdruk van het folie sterk af (KLE 84), waardoor het folie al bij een geringe targetdruk breekt. De grootte van het gedissipeerde vermogen  $Q$  in het folie wordt bepaald door de dikte  $d$  van het folie en de grootte van de bundelstroom  $I$ . Voor niet te dikke molybdeenfolies ( $d < 100 \mu\text{m}$ ) wordt (bij een protonenenergie van 26 MeV) afgeleid:



$$Q = 0,013 \cdot I \cdot d \quad (5.11)$$

waarbij  $Q$  in W,  $I$  in  $\mu\text{A}$  en  $d$  in  $\mu\text{m}$  worden uitgedrukt.

De maximale vuldruk die gebruikt kan worden is afhankelijk van de dikte van het folie en de grootte van de bundelstroom. Tijdens een bestraling zal de druk  $p$  in het target toenemen. Bij een vuldruk  $p_0$  en een bundelstroom  $I$  geldt bij benadering

$$p = p_0(1+0,031 \cdot I) \quad (5.12)$$

Deze relatie is een linearisatie van de drukafhankelijkheid, die experimenteel bepaald is bij het target dat gebruikt wordt voor routinematige produktie. De drukafhankelijkheid is gemeten bij een vuldruk van 2,5 bar en bij bundelstromen tussen 0 en 30  $\mu\text{A}$ . In het vervolg wordt verondersteld dat vergelijking (5.12) geldig is voor willekeurige drukken en bundelstromen en onafhankelijk is van de vorm van de targethouder.

De maximale waarde die  $p$  mag aannemen tijdens een bestraling is evenredig met de dikte van het folie, althans zo lang de mechanische eigenschappen van het folie door de temperatuurverhoging niet veranderen (KLE 84).

In tabel 5.11 is als functie van de dikte van het targetfolie aangegeven hoe groot de maximale bundelstroom ( $I_{\text{max}}$ ) is en welke maximale waarde voor de vuldruk  $p_0$  ( $p_{0,\text{max}}$ ) hiermee correspondeert.

De grootte van  $I_{\text{max}}$  is zó bepaald dat bij deze stroom 1 W in het folie gedissipeerd wordt. Folies met een dikte van 25  $\mu\text{m}$ , waarin gedurende langere tijd (enige honderden uren) dit vermogen gedissipeerd werd, bleken, mechanisch gezien, nog in een goede staat te verkeren (de maximale bundelstroom bij deze bestralingen was 30  $\mu\text{A}$ ). Het is niet bekend of, en zo ja hoeveel, het gedissipeerde vermogen in het folie vergroot mag worden, alvorens de mechanische eigenschappen slechter worden.

De waarde voor  $p_{0,\text{max}}$  is zó bepaald dat tijdens een bestraling met een bundelstroom  $I_{\text{max}}$  de druk gelijk is aan 0,5.d bar (waarbij  $d$  wordt uitgedrukt in  $\mu\text{m}$ ). Experimenteel is

bepaald dat de maximale druk (in bar) die op een folie (met een diameter van 12 mm) uitgeoefend mag worden alvorens het breekt, ongeveer gelijk is aan  $1.d$  ( $d$  in  $\mu\text{m}$ ). Er is dus een veiligheidsfactor 2 aangenomen bij de berekening van de maximale druk. Bij de verdere berekeningen wordt steeds uitgegaan van folies met een diameter van 12 mm.

$d$ ( $\mu\text{m}$ )	$I_{\text{max}}$ ( $\mu\text{A}$ )	$p_{0,\text{max}}$ (bar)
5	153,8	0,44
10	76,9	1,48
15	51,3	2,91
20	38,5	4,57
25	30,8	6,41
30	25,6	8,39
35	22,0	10,43
40	19,2	12,57
45	17,2	14,71
50	15,4	16,96

Tabel 5.11 Maximale bundelstroom en targetdruk als functie van de dikte van het targetfolie.

In fig. 5.12 is als functie van de dikte van het targetfolie voor verschillende hoeveelheden gas aangegeven hoe groot de maximale  $^{123}\text{I}$ -activiteit op calibratietijd (34 uur na EOB) is die na een uur bestralen geproduceerd kan worden. Hierbij is uitgegaan van de maximale waarden voor  $I$  en  $p_0$ , zoals die vermeld zijn in tabel 5.11.

In fig. 5.13 is de maximale activiteit op calibratietijd uitgezet, die per  $\mu\text{Ah}$  geproduceerd kan worden, weer als functie van de dikte van het folie en met  $I$  en  $p_0$  zoals vermeld in tabel 5.11.

Uit deze figuren kan afgeleid worden dat om een hoge  $^{123}\text{I}$ -activiteit per uur bestralen te verkrijgen een hoge bundelstroom, een dun folie en een lage targetdruk gekozen

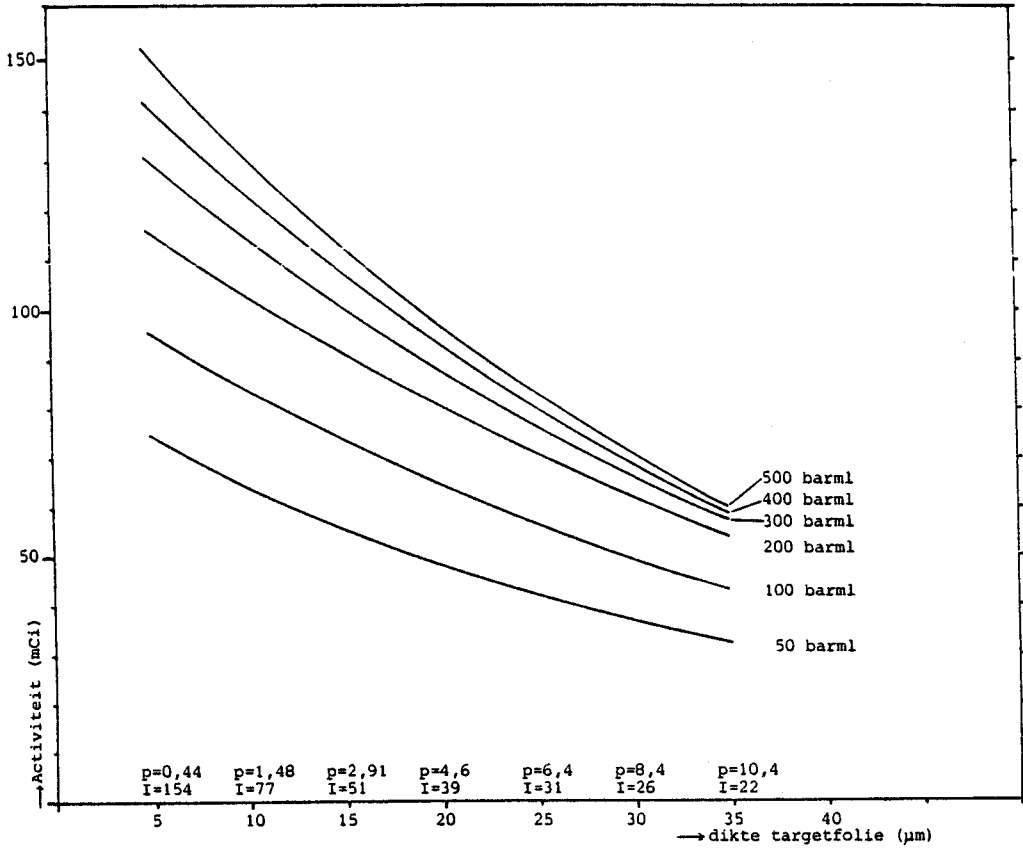


Fig. 5.12 Maximale  $^{123}\text{I}$  activiteit op calibratietijd indien de bundelstroom niet begrensd wordt.

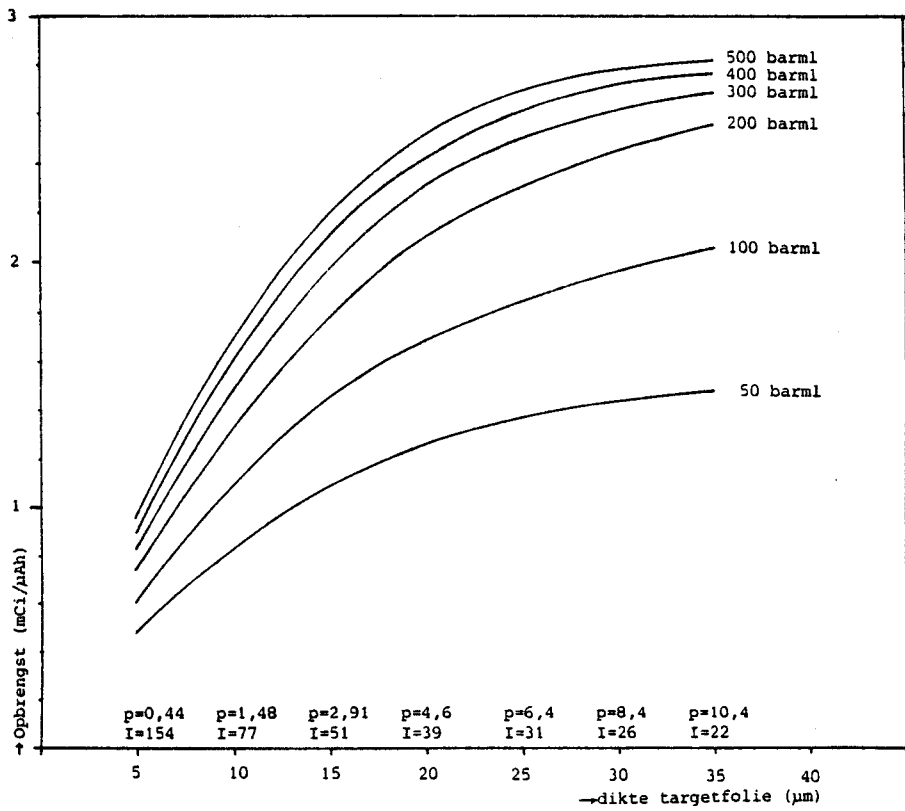


Fig. 5.13 Opbrengst van  $^{123}\text{I}$  indien de bundelstroom niet begrensd wordt.

moeten worden, terwijl voor het verkrijgen van een grote opbrengst (activiteit per  $\mu\text{Ah}$ ) een lage bundelstroom, een dik folie en een hoge targetdruk vereist zijn.

De keuze van de bundelstroom wordt begrensd door de maximale bundelstroom die door het cyclotron geleverd kan worden. Deze waarde is momenteel ca.  $30 \mu\text{A}$  (op het target), maar kan wellicht in de toekomst opgevoerd worden tot ca.  $50 \mu\text{A}$ .

Rekening houdend met de begrenzing van de bundelstroom is in fig. 5.14 en 5.15 nogmaals de maximale activiteit op calibratietijd per uur bestralen uitgezet als functie van de dikte van het targetfolie. In fig. 5.14 is de maximale bundelstroom  $I_{\text{max}} 30 \mu\text{A}$ , in fig. 5.15 is  $I_{\text{max}} 50 \mu\text{A}$ .

Het target dat momenteel gebruikt wordt bestaat uit 110 barml  $^{124}\text{Xe}$ -gas, bij een vuldruk van ca. 2,5 bar. In fig 5.9 en 5.10 is dit target aangegeven met het symbool  $\times$ . Uit deze figuren kan afgeleid worden dat de maximale opbrengst van een target, dat de vorm heeft van een equi-opbrengstdichtheidsvlak,  $1,44 \text{ mCi}/\mu\text{Ah}$  is. Daar de experimenteel bepaalde waarde voor de opbrengst van het huidige target  $1,4 \text{ mCi}/\mu\text{Ah}$  is, kan geconcludeerd worden dat het huidige target een goede vorm heeft. Uit fig. 5.14 kan echter afgeleid worden dat de opbrengst nog ca. 35% verhoogd kan worden (bij dezelfde hoeveelheid gas) door de druk te verhogen naar 6,4 bar. In dat geval wordt bij een bundelstroom van  $30 \mu\text{A}$   $57 \text{ mCi}$  per uur bestralen geproduceerd, terwijl dat momenteel  $42 \text{ mCi/uur}$  is.

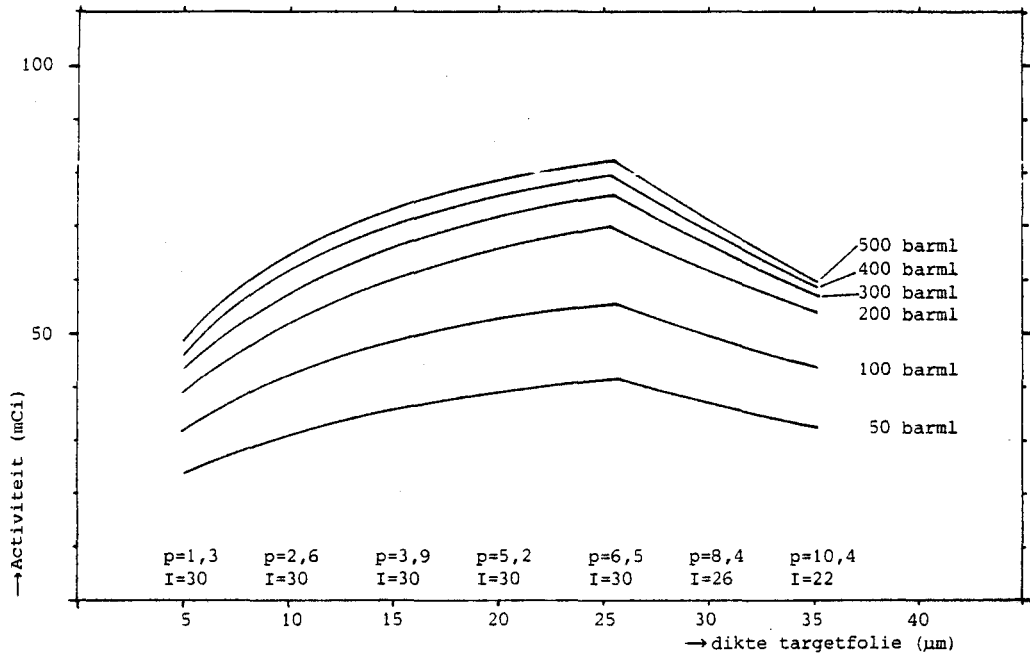


Fig. 5.14 Maximale  $^{123}\text{I}$  activiteit op calibratietijd indien  $I_{\text{max}} = 30 \mu\text{A}$ .

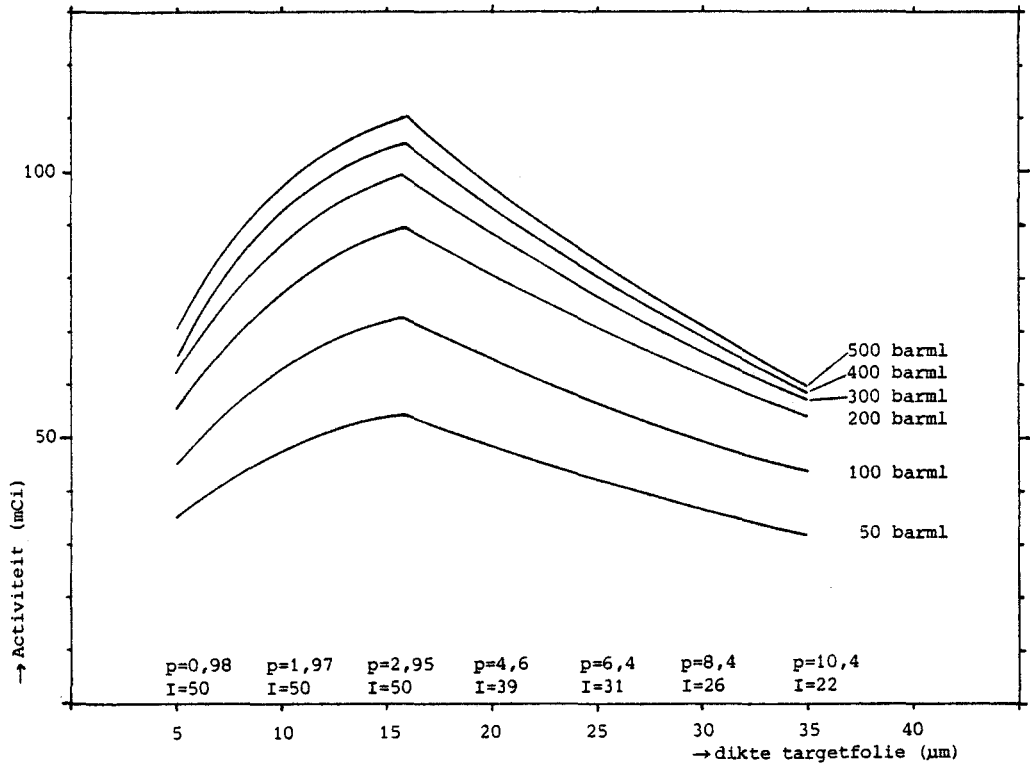


Fig. 5.15 Maximale  $^{123}\text{I}$  activiteit op calibratietijd indien  $I_{\text{max}} = 50 \mu\text{A}$ .

## 6 BEPALEN VAN HET UITSPOELRENDEMENT VAN EEN ALUMINIUM TARGETHOUDER EN ALUMINIUM KOELVALLEN

*In dit hoofdstuk worden de experimenten beschreven waarbij getracht werd  $^{123}\text{I}$  van een aluminium oppervlak te verwijderen m.b.v. verschillende spoelvloeistoffen.*

### 6.1 Inleiding

Een probleem bij het gebruik van de huidige nikkelen targethouder is dat de targethouder sterk geactiveerd wordt door protonen en door neutronen die vrijkomen bij de kernreacties op  $^{124}\text{Xe}$  en Ni. Bij regelmatig gebruik bouwt de activering t.g.v. de langlevende nucliden zich op tot enkele Ci's. Het exposietempo op het oppervlak van de targethouder is dan enkele tientallen R/h.

De meest voor de hand liggende oplossing van dit probleem is een targethouder te gebruiken van een materiaal dat nauwelijks geactiveerd wordt, of waarin slechts radionucliden met een korte halveringstijd (in de orde van enkele uren) worden aangemaakt. Een materiaal dat aan deze voorwaarde voldoet is aluminium: het radionuclide met de langste halveringstijd dat door activering ontstaat is  $^{24}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 15$  h), via de  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$ -reactie.

Omdat de halveringstijd van het langst levende nuclide 15 uur is, kunnen, nadat de targethouder enkele dagen niet bestraald is, werkzaamheden in de buurt van de bestralingsopstelling in een acceptabel stralingsveld uitgevoerd worden.

Om te bepalen of het mogelijk is het  $^{123}\text{I}$  uit een aluminium targethouder te verwijderen zijn een aantal experimenten uitgevoerd waarbij het uitspoelrendement van een aluminium targethouder bij verschillende spoelvloeistoffen bepaald werd. Om te onderzoeken of  $^{123}\text{I}$  dat gevormd wordt tijdens de bestraling in de aluminium targethouder zich op dezelfde wijze aan de wand 'bindt' als  $^{123}\text{I}$  dat gevormd wordt in een 'vat' dat niet bestraald wordt werd het bestraalde xenon

overgebracht naar een tweetal 'koelvallien'. Hierin werd, uit verval van  $^{123}\text{Xe}$ ,  $^{123}\text{I}$  gevormd, dat eveneens uitgespoeld werd.

Het was niet de bedoeling te onderzoeken of de koelvallien die momenteel gebruikt worden (en vervaardigd zijn van roestvrij staal (RVS)) vervangen kunnen worden door aluminium koelvallien, omdat het probleem van de activering niet bestaat bij de koelvallien. Bovendien heeft aluminium een veel groter warmtegeleidingsvermogen dan RVS, hetgeen ongewenst is bij gebruik als koelval.

Bij het bepalen van het uitspoelrendement is niet gekeken naar de chemische vorm van het  $^{123}\text{I}$ .

## 6.2 Experimenten

Een aluminium targethouder, afgesloten door een targetfolie (Duratherm, Havar of molybdeen met een dikte van 15-25  $\mu\text{m}$ , zie fig. 6.1) gevuld met xenon werd bestraald met 26 MeV protonen. Het Xe-gas bestond uit 99,8% verrijkt  $^{124}\text{Xe}$ , verontreinigd met enkele procenten natuurlijk Xe. De vuldruk varieerde tussen 0,03 en 0,05 bar.

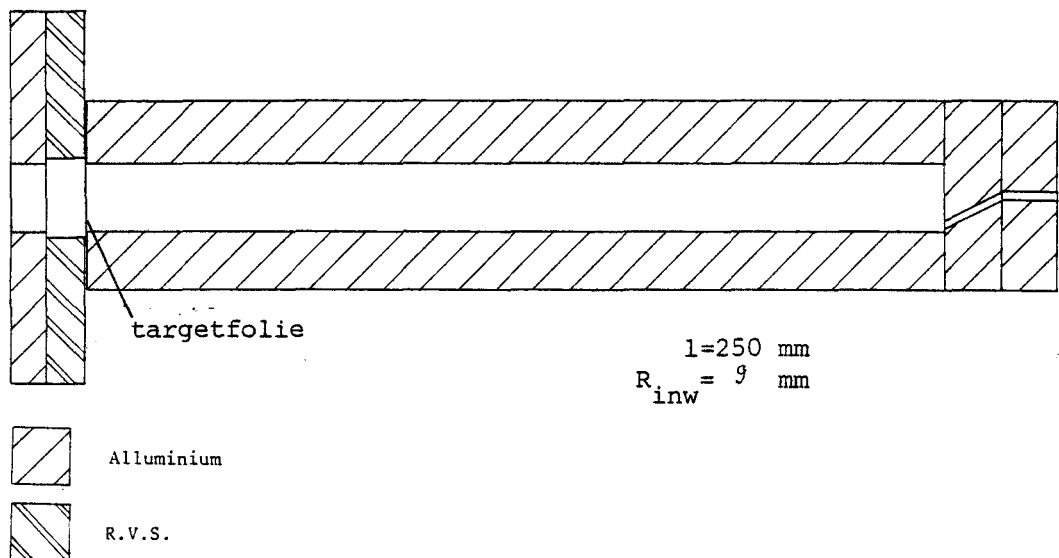


Fig. 6.1 Schematische weergave van de targethouder en de 'koelvallien'

Er werd gedurende 10 minuten bestraald bij een bundelstroom van  $1 \mu\text{A}$ . Het Xe werd 10 minuten na EOB m.b.v. vloeibare stikstof teruggewonnen in een kleine opslagcilinder. Een gedeelte van dit Xe (ca. 57%) werd daarna overgebracht in een aluminium 'koelval', een cilinder met dezelfde inwendige afmetingen als de targethouder. Het  $^{123}\text{Xe}$  in deze 'koelval' vervalt naar  $^{123}\text{I}$ , dat neerslaat op de wand. Na ca. 12 minuten werd het Xe uit de 1<sup>e</sup> 'koelval' via de opslagcilinder overgebracht naar een 2<sup>e</sup> 'koelval', eveneens met dezelfde afmetingen als de targethouder. In koelval-2 werd gedurende 25 minuten  $^{123}\text{I}$  gevormd, waarna het Xe weer teruggewonnen werd in de opslagcilinder.

De targethouder en de twee 'koelvallen' (kortweg de 3 cilinders) werden naar een radiologisch laboratorium in gebouw Athene gebracht om uitgespoeld te worden.

Vóór het uitspoelen werd de activiteit van het  $^{123}\text{I}$  in de 3 cilinders gemeten m.b.v. een Ge(Li)-detektor en een Multi-Channel-Analyser (MCA). Vervolgens werden de cilinders verwarmd tot maximaal  $70^{\circ}\text{C}$  en werd 20 ml spoelvoeistof ingepompt m.b.v. een peristaltische slangenpomp. De gevulde cilinders werden gedurende ca. 10 minuten rondgedraaid op een rollenbankje. Daarna werd de spoelvoeistof teruggepompt in de spoelvoeistof-flesjes.

In totaal werd elke cilinder 3 maal gespoeld, waarna de rest-activiteit van het  $^{123}\text{I}$  in de cilinder gemeten werd. Ook de activiteit van alle flesjes met spoelvoeistof werd gemeten. Omdat de geometrie van de cilinders en die van de flesjes spoelvoeistof niet hetzelfde is, kunnen de gemeten activiteiten niet rechtstreeks met elkaar vergeleken worden. Wel kan gesteld worden dat de activiteit van een cilinder vóór het uitspoelen, verminderd met de activiteit na het uitspoelen gelijk moet zijn aan de som van de activiteiten in de 3 flesjes spoelvoeistof (als gecorrigeerd wordt voor verval). Op deze wijze kan een correctiefactor verkregen worden voor het verschil in detectie-rendement van de cilinders en de flesjes spoelvoeistof.



Het uitspoelrendement wordt gedefiniëerd als de fractie van de  $^{123}\text{I}$ -activiteit in een cylinder die na 3 maal uitspoelen uit de cylinder verwijderd is. Omdat het uitspoelen in 3 stappen plaats vindt kan ook bepaald worden welke fractie de 1<sup>e</sup> keer wordt uitgespoeld en welke fracties de 2<sup>e</sup> en 3<sup>e</sup> keer. Hieraan kan beoordeeld worden of het zin heeft nog een 4<sup>e</sup> keer uit te spoelen (b.v. als ook de 3<sup>e</sup> maal nog een redelijk grote fractie van de begin-activiteit wordt uitgespoeld). Om te bepalen met welke spoelvloeistof de beste resultaten worden verkregen, zijn alle cylinders met vier verschillende spoelvloeistoffen uitgespoeld.

### 6.3 Resultaten

Tijdens de eerste 4 uitspoelexperimenten bevond zich op de wand van de targethouder, en in mindere mate op die van koelval-1 en koelval-2, een witte aanslag. Deze aanslag bestond waarschijnlijk uit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , dat ontstaan was nadat de cylinders na de eerste bestraling, die ca. 6 maanden voor de eigenlijke uitspoel-experimenten plaats vond, lange tijd blootgesteld waren aan de oxiderende invloed van water en lucht). Vóór het uitvoeren van de tweede serie uitspoel-experimenten zijn de cylinders gereinigd met fijn schuurpapier, een polijstmiddel (KOMMANDANT autolak-reiniger) en 96% alcohol.

De resultaten van de uitspoel-experimenten zijn vermeld in tabel 6.2.

bestra- ling	targethouder		koelval-1		koelval-2	
	spoel- vloeist.	uitsp. rend. (%)	spoel- vloeist.	uitsp. rend. (%)	spoel- vloeist.	uitsp. rend.
1	A	48	B	96	C	100
2	B	82	C	97	D	92
3	C	82	-	-	A	93
4	D	80	D	90	B	96
5	C	76	B	91	D	94
6	C	76	-	-	-	-
7	D	92	C	95	-	-

Tabel 6.2 Resultaten van de uitspoel-experimenten.

De spoelvroelstoffen die gebruikt werden zijn:

A = water

B = 0,002M NaOH-oplossing

C = water met 1  $\mu\text{g/ml}$  CsI

D = 1  $\mu\text{g/ml}$  CsI in een 0,0002M NaOH-oplossing

Als spoelvroelstoffen zijn oplossingen van NaOH en/of CsI gebruikt, omdat gebleken is dat met deze spoelvroelstoffen een goed uitspoelrendement van  $^{123}\text{I}$  verkregen wordt bij een nikkel oppervlak. Het  $\text{I}^-$  in CsI werkt als drager: door een overmaat aan  $\text{I}^-$ -ionen toe te voegen aan de zeer kleine hoeveelheid  $^{123}\text{I}$ -atomen is het  $^{123}\text{I}$  beter van de wand te verwijderen. NaOH verlaagt de zuurgraad van de oplossing, hetgeen wenselijk is bij de opwerking tot radiofarmacon.

Bij het meten van de activiteit van het  $^{123}\text{I}$  bleek dat zich behalve  $^{123}\text{I}$  ook  $^{123}\text{Xe}$  in de targethouder, en in mindere mate in de 'koelval-1' bevond. De activiteit van het  $^{123}\text{Xe}$  in de targethouder bedroeg ca. 10 à 15% van de totale  $^{123}\text{Xe}$ -activiteit die bij de bestraling geproduceerd was. De  $^{123}\text{Xe}$ -activiteit in koelval-1 en koelval-2 was ca. 10% resp. 5% van die in de targethouder.

#### 6.4 Conclusies en discussie

Enkele conclusies die naar aanleiding van de uitspoel-experimenten getrokken kunnen worden zijn:

- In het algemeen kan  $^{123}\text{I}$  goed van een aluminium oppervlak gespoeld worden: het uitspoelrendement van de aluminium 'koelvallen' b.v. is ca. 95%. Het uitspoelrendement van de targethouder is echter aanzienlijk lager (ca. 80%). In het eerste eluaat (de eerste hoeveelheid water die uitgespoeld wordt) bevindt zich 80-90% van de totale uitgespoelde activiteit, in het tweede en derde eluaat ca. 10% resp. 5%. Een mogelijke verklaring voor het verschil in uitspoelrendement tussen de targethouder en de 'koelvallen' is dat het aluminium oppervlak van de targethouder tijdens de bestraling zodanig aangetast wordt dat er kleine 'poriën' in de aluminium wand of in de dunne aluminiumoxide-huid, die zich op het oppervlak bevindt, gevormd worden. Een deel van de  $^{123}\text{I}$ -atomen of ionen, en wellicht ook andere moleculen die zich in deze 'poriën' bevinden zijn moeilijk van de wand te verwijderen.
- De keuze van de spoelvloeistof blijkt weinig invloed te hebben op het uitspoelrendement (althans in het geval van de 4 spoelvloeistoffen die in deze experimenten zijn gebruikt).
- Er blijft bij het terugwinnen van het xenon 10 à 15% van de totale hoeveelheid  $^{123}\text{Xe}$  achter in de targethouder, ook na het vacuüm pompen van de targethouder. Het  $^{123}\text{Xe}$  is ook met spoelvloeistof nauwelijks uit de targethouder te verwijderen (slechts 15 à 20 % wordt uitgespoeld). Ook in de 'koelvallen' blijft een hoeveelheid  $^{123}\text{Xe}$  achter bij het terugwinnen van het xenon-gas (10 à 20 maal minder dan bij de targethouder). Het  $^{123}\text{Xe}$  bleek, nadat de targethouder met perslucht werd doorgeblazen, wel uit de targethouder verwijderd te zijn. Het is niet bekend of behalve  $^{123}\text{Xe}$  ook  $^{124}\text{Xe}$  achterblijft bij het terugwinnen.

## 7 CONCLUSIES EN DISCUSSIE

*In dit hoofdstuk worden een aantal conclusies getrokken en de verkregen resultaten worden kritisch beschouwd. Er wordt kort ingegaan op de nauwkeurigheid van een aantal gemeten en berekende grootheden. Tenslotte worden een aantal suggesties gedaan voor verder onderzoek.*

### 7.1 Conclusies

*De met het programma JOOD berekende  $^{123}\text{I}$ -activiteit, geproduceerd bij een (uit 2 delen bestaande) bestraling, stemt goed overeen met de gemeten waarden van de activiteit.*

De gemeten activiteit van het  $^{123}\text{I}$ , afkomstig uit de targethouder, is iets lager dan berekend met het programma JOOD (hoofdstuk 3), terwijl de activiteit van het  $^{123}\text{I}$  in 123-I-KV-1 iets hoger is dan berekend. De afwijking is in beide gevallen 5 à 10% en kan o.a. verklaard worden door het verschil in uitspoelrendement van de targethouder en de koelval.

*De met het programma PROSIM berekende protonenverstrooiing door een dun metaal-folie stemt goed overeen met de verstrooiing die gegeven wordt door Marion en Zimmerman.*

Marion en Zimmerman (MAR 67) hebben aan de hand van de z.g.n. NSW-theorie (hoofdstuk 4) voor protonen met een energie van 10, 50 en 100 MeV, die verstrooid worden door een nikkel-folie met een dikte van  $10 \text{ g/m}^2$ , de hoekverdeling berekend. De berekening van de hoekverdeling met het programma PROSIM stemt goed overeen met de door hen berekende hoekverdeling (appendix B).

*De berekende verstrooiing in een gastarget is voor  $N_{\text{folie}}$  (het aantal 'folies' waarin het target wordt verdeelt) <100 onafhankelijk van de grootte van  $N_{\text{folie}}$ .*

Indien een Xe-gastarget met een druk van 3 bar en een lengte van 500 mm wordt opgedeeld in folies is de NSW-theorie geldig indien  $5 < N_{\text{folie}} < 800$ . Indien  $N_{\text{folie}} < 100$  wordt gekozen blijkt de verstrooiing vrijwel onafhankelijk te zijn van  $N_{\text{folie}}$  (appendix B).

*De protonenverstrooiing in een gastarget, die wordt berekend met het programma PROSIM is groter dan de experimenteel gemeten verstrooiing, maar stemt kwalitatief wel vrij goed overeen met de experimenten.*

Door Mulders (MUL 85) is de verstrooiing van 24 MeV-protonen in diverse krypton gastargets gemeten. De verstrooiing in deze targets is ook berekend met het programma PROSIM. De berekende verstrooiing is groter dan de experimenteel gemeten verstrooiing. Een mogelijke verklaring voor deze afwijking kan gevonden worden in het feit dat in een gastarget, t.g.v. opwarming door de protonenbundel, een dichtheidsreductie optreedt ter plaatse van de bundel. De berekende verstrooiing komt overeen met de experimenteel gemeten verstrooiing in een target waarin ter plaatse van de bundel een dichtheidsreductie optreedt van ca. 35%.

*De maximale  $^{123}\text{I}$ -opbrengst die bij bestraling van een  $^{124}\text{Xe}$ -gastarget verkregen kan worden is 3,0 mCi/ $\mu\text{Ah}$ , 34 uur na EOB gemeten.*

Bij het bestralen van een  $^{124}\text{Xe}$ -target dat zo groot is dat alle protonen in het gas gestopt worden is de opbrengst 3,0 mCi/ $\mu\text{Ah}$ . Dit target bevat echter een zo grote hoeveelheid gas ( $> 1000$  barml, bij een vuldruk van 6 bar) dat de opbrengst in de praktijk onder deze waarde zal liggen (bij het huidige target, dat 110 barml  $^{124}\text{Xe}$  bevat, is de  $^{123}\text{I}$ -opbrengst, op 34 uur na EOB, 1,4 mCi/ $\mu\text{Ah}$ ).

*De maximale  $^{123}\text{I}$ -activiteit (op 34 uur na EOB) die per uur bestralen verkregen kan worden bij gebruik van een target dat 110 barml  $^{124}\text{Xe}$  bevat is 57 mCi bij een bundelstroom van 30  $\mu\text{A}$ , en 76 mCi bij een bundelstroom van 50  $\mu\text{A}$ .*

De  $^{123}\text{I}$ -opbrengst is afhankelijk van de hoeveelheid gas die bestraald wordt, de druk van het gas en de grootte van de bundelstroom. De maximale bundelstroom en de maximale druk die toegepast kunnen worden worden o.a. bepaald door de dikte van het targetfolie.

In het algemeen is het zo dat de grootste activiteit per uur bestralen wordt verkregen indien de bundelstroom zo hoog mogelijk wordt gekozen. De grootte van de bundelstroom bepaalt de maximale dikte van het targetfolie dat gebruikt kan worden (omdat het in het folie gedissipeerde vermogen, dat evenredig is met de dikte van het folie, niet te hoog mag worden), en daarmee ook de maximale vuldruk van het targetgas (hoofdstuk 5). Het target dat momenteel gebruikt wordt bevat 110 barml  $^{124}\text{Xe}$ . De activiteit die bij dit target per uur bestralen geproduceerd wordt is 'slechts' 42 mCi op 34 uur na EOB (bij een bundelstroom van 30  $\mu\text{A}$ ), zodat de opbrengst, door een betere keuze van de vorm van de targethouder en de druk van het targetgas, bij dezelfde hoeveelheid gas, nog 35% verhoogd kan worden. De vuldruk is dan echter ruim 2 maal zo hoog.

*Door uitspoelen met water (dat eventueel een kleine hoeveelheid  $\text{CsI}$  of  $\text{NaOH}$  bevat) kan  $^{123}\text{I}$  goed van een aluminium oppervlak verwijderd worden. Het uitspoelrendement van een aluminium targethouder is echter aanzienlijk lager dan dat van een aluminium cylinder die niet bestraald wordt.*

Bij experimenten waarbij het uitspoelrendement van aluminium cylinders werd bepaald bleek dat bij cylinders, die niet bestraald werden, ca. 95% van het  $^{123}\text{I}$  verwijderd kon worden door 3 maal met 20 ml spoelvloeistof uit te spoelen. Bij een aluminium targethouder (een zelfde cylinder die wel bestraald

werd) bleek het uitspoelrendement slechts ca. 80% te zijn. Dit verschil in uitspoelrendement wordt waarschijnlijk veroorzaakt door het veranderen van de eigenschappen van de wand van de cilinder door de bestraling met protonen.

## 7.2 Nauwkeurighedsbeschouwing

Bij de uitspoelexperimenten zijn activiteiten gemeten. De onnauwkeurigheid van de activiteitsmetingen was 5-10% in het geval van de flesjes met spoelvloeistof. De absolute activiteit van de radionucliden die zich in de aluminium cilindres bevonden was minder nauwkeurig te bepalen, wegens de grote afwijking van de puntbron-geometrie. Bij het vergelijken van de activiteiten, gemeten in dezelfde cilinder, wordt het probleem van de correctie voor de geometrie echter omzeild, zodat ook voor deze gemeten activiteiten een (relatieve) onnauwkeurigheid van 5-10% wordt verkregen.

De onnauwkeurigheid van de met het programma PROSIM berekende FWHM van een bundelprofiel is ca. 3% (als  $N_{\text{prot}}=32000$ ). Deze waarde is bepaald door verstrooiing in een zelfde target verschillende malen te herhalen en de verkregen bundelprofielen met elkaar te vergelijken. Door diverse parameters te variëren is gebleken dat de berekeningsmethode goed geconditioneerd is.

## 7.3 Aanbevelingen voor verder onderzoek

Een aantal punten die nog verder onderzocht kunnen worden zijn:

- Het bepalen van de dichtheidsreductie in een xenon-target waarbij vooral de invloed van de grootte van de bundelstroom (ook bij  $I < 1 \mu\text{A}$ ), de vorm van de targethouder en de druk van het targetgas wordt onderzocht.

- Het experimenteel bepalen van de excitatiefuncties van de reacties van protonen op  $^{124}\text{Xe}$ .
- Het bepalen van de druk van het targetgas als functie van de bundelstroom, bij verschillende target-vormen en vuldrukken.

Bij het berekenen van de maximale  $^{123}\text{I}$ -activiteit per uur bestralen is uitgegaan van een gelineariseerd verband tussen de targetdruk en de bundelstroom. Deze relatie is waarschijnlijk slechts geldig voor het target dat momenteel gebruikt wordt voor de routine-producties, en niet voor targets met een andere vorm of vuldruk.

- Het bepalen van de maximale druk die op een folie uitgeoefend mag worden als functie van de dikte (en diameter) van het folie en de grootte van de bundelstroom.

Indien nieuwe relaties worden bepaald voor de targetdruk als functie van de bundelstroom en voor de maximale druk als functie van de dikte van het targetfolie, kunnen, uitgaande van fig. 5.9 en 5.10 nieuwe figuren 5.11-5.14 geconstrueerd worden.

- de uitspoelexperimenten van de aluminium targethouder kunnen worden voortgezet, waarbij extra aandacht wordt besteed aan het achterblijven van  $^{123}\text{Xe}$  (en wellicht  $^{124}\text{Xe}$ ) op het aluminium oppervlak.



LITERATUUR

- BER 84  $^{123}\text{I}$ -produktie via de (p,2n)- en (p,pn)-reactie op  $^{124}\text{Xe}$ . Berkers, P.W.J. en Jonkers, A.G.M., Afstudeerverslag THE (1984)
- BET 53 Molière's Theory of Multiple Scattering. Bethe, H.A., Phys.Rev. 89 1256 (1953)
- BOG 83 Theoretische en experimentele methode ter bepaling van de verstrooiing van een protonenbundel in een gas. Bogaard, M. v.d. en Bree, N. v., Stageverslag THE (1983)
- BOS 77 A new approach to target chemistry for the iodine-123 production via the  $^{124}\text{Te}(p,2n)$  reaction. Bosch, R.L.P. v.d., Goeij, J.J.M. de, Heide, J.A. v.d., Tertoolen, J.F.W., Theelen, H.M.J. and Zegers, C., Int.J.Appl.Radiat.Isot. 28 255 (1977)
- BUR 86 Veiligheidsrapport bij de  $^{124}\text{Xe}$ -bestralingsopstelling. Burg, R.M.W.J. v.d., Addendum bij het afstudeerverslag (1986)
- COO 61 Argon, Helium and the rare gases I. Cook, G.A. (1961)
- COR 77 The Flow of Heat, Cornwell, K. (1977)
- DOS 84 Dosimetrie bij inwendige besmetting volgens het ICRP-30 model. Nederlandse Vereniging voor Stralingshygiëne (1984)
- GOU 40 Multiple Scattering of Electrons. Goudsmid, S.A. and Saunderson, J.L., Phys.Rev. 57 24 (1940)

- GRA 78 Statistical-Model Based Evaluations of Reactions Producing  $^{123}\text{I}$  and  $^{127}\text{Xe}$ . Grabmayr, P. and Nowotny, R., Int.J.Appl.Radiat.Isot. 29 261 (1978)
- HAA 84 Nucleaire geneeskunde. Haas, G. de, Verdegaal, W.P., Graaf, C.N. de en Garritsen, F.A. (1984)
- HAN 83 Handbook of Chemistry and Physics. (1983)
- HES 82 Optical Studies of the Influences of an Intense Ion Beam on High-pressure Gas Targets. Heselius S-J, Lindblom P. and Solin O., Int.J.Appl.Radiat.Isot. 33 653 (1982)
- HOT 83 Bedienungsanleitung Überdruckaufnehmer P 11. Hotting Baldwin Messtechnik, J.L. Bienfait B.V., Aerdenhout
- ICR 83 Radionuclide transformations: Energy and intensity of emissions. ICRP-publicatie 38 (1983)
- JAN 82 Proton Range Energy Tables, 1 keV - 10 GeV. Janni, J.F., At.Data.Nucl.Dat.Tabl. 22 (1982)
- JAN 77 BINAS Informatieboek vwo-havo voor het onderwijs in de natuurwetenschappen. Jansen, A.I. (1977)
- KEL 73 Estimation of Unknown Excitationfunctions and the Thick Target Yields for p, d,  $^3\text{He}$  and  $\alpha$  reactions. Keller, K.A., Lange, J. and Münzel, H., Landolt-Bornstein New Series, Vol. 5, part. c (1973)
- KLE 84 De produktie met het THE-cyclotron van  $^{18}\text{F}$  als  $^{18}\text{F}-\text{F}_2$  via de  $^{20}\text{Ne}(d,\alpha)^{18}\text{F}$ -kernreactie voor toepassingen in de nucleaire geneeskunde. Kleeven, W.J.G.M., Afstudeerverslag THE (1984)

- LEW 50 Multiple Scattering in an Infinite Medium. Lewis, H.W., Phys.Rev. 78 526 (1950)
- MAR 67 Multiple Scattering of Charged Particles. Marion, J. B. and Zimmerman, B.A., Nucl.Inst.Meth. 51 93 (1967)
- MIH 72 Simulation: statistical foundations and methodology. Mihram, G.A. (1972)
- MIR 75 Summary of Current Radiation dose estimates to Humans from  $^{123}\text{I}$ ,  $^{124}\text{I}$ ,  $^{125}\text{I}$ ,  $^{126}\text{I}$ ,  $^{130}\text{I}$ ,  $^{131}\text{I}$  and  $^{132}\text{I}$  as Sodium Iodide. Mird/Dose estimate report no. 5, J. Nucl.Med. 16 857 (1975)
- MOL 47 Theorie der Streuung Schneller Geladener Teilchen I. Molière, G., Z.Naturforsch. 2a 133 (1947)
- MOL 48 Theorie der Streuung Schneller Geladener Teilchen II. Molière, G., Z.Naturforsch. 3a 78 (1948)
- MUL 84 Yield Curves and Beam Current Dependent Production Rates of Rb Radioisotopes Produced by Protons on a Krypton Gas Target. Mulders, J.J.L. Int.J.Appl. Radiat.Isot. 35 475 (1984)
- MUL 85 Quantitative Autoradiographic Measurements of the Scattering of Protons in a Krypton Gas Target. Mulders, J.J.L. and Steenhuisen, J.W.G., To be published in Int.J.Appl.Radiat.Isot.
- NIG 59 Theory of Multiple Scattering: Second Born Approximation and Corrections to Molière's Work. Nigam, P.B., Sundaresan, M.K. and Wu T-Y., Phys.Rev. 115 491 (1959)
- OSE 77 Non-linear Behaviour of Gas Targets for Isotope Production. Oselka M., Gindler J.E. and Friedman A.M., Int.J.Appl.Radiat.Isot. 28 804 (1977)

- SCO 52 Mean-value Calculations for Projected Multiple Scattering. Scott, W.T., Phys.Rev. 85 245 (1952)
- SLA 86 Eigenschappen van folies en foliekoeling in gastargettechnologie. Slangen, J.J.M. Stageverslag THE (1986)
- SNY 49 Multiple Scattering of Fast Charged Particles. Snyder H.S. and Scott, W.T., Phys.Rev. 76 220 (1949)
- SOL 84 Production of  $^{81}\text{Rb}$  from Kr - A Target Study. Solin, O., Heselius, S-J., Lindblom, P. and Manngard, P., J. Lab.Comp.Radiofarm. 21 1275 (1984)
- STE 84 Theoretische en experimentele bepaling van de verstrooiing van een protonenbundel in een gas. Stekelenburg, J.v. en Janssen, R., Stageverslag THE (1984)
- TEC 84 Techniques du vide, catalogue composants. Alcatel (1984)
- VAN 83 Optimation of the Production of  $^{11}\text{CO}_2$  by Proton Irradiation of Nitrogen Gas. Vandewalle, T. and Vandecasteele, C., Int.J.Appl.Radiat.Isot. 34 1459 (1983)
- VAR 75 Tables on thermophysical properties of liquids and gases. Vargaftik, N.B. (1975)
- WEL 78 Engineering Heat Transfer. Welty, J.R. (1978)
- WIE 84 Charged Particle Penetration in Gas Targets Designed for Accelerator Production of Radionuclides Used in Nuclear Medicine. Wieland, B.W., Schlyder, D.J. and Wolf, A.P., Int.J.Appl.Radiat.Isot. 35 387 (1984)

WIL 39 Concerning the scattering of fast electrons and of  
cosmic-ray particles. Williams, E.J., Proc.Roy.Soc.  
A169 (1939)