

Die Isotopenproduktion in Kernreaktoren

Von P. TEMPUS

Reaktor AG, Würenlingen

Eine Aufgabe der heutigen Versuchsreaktoren ist bekanntlich die Herstellung von Radioisotopen. Auf einigen Gebieten – so zum Beispiel in der Medizin – hat die Nachfrage bereits so feste Formen angenommen, daß die Atomzentren dazu übergegangen sind, die wichtigsten Isotope in regelmäßigem Turnus herzustellen, ohne erst die ausdrückliche Bestellung abzuwarten. Zu diesen gehören ^{198}Au , ^{32}P , ^{131}I , ^{51}Cr , ^{14}C , ^{24}Na und ^{60}Co . Viele andere Isotope werden auf Bestellung hergestellt.

Die Frage, warum gerade die Kernreaktoren ein so bedeutendes Instrument der Isotopenproduktion geworden sind, läßt sich einfach beantworten: Der Reaktor ist die intensivste Neutronenquelle, die uns heute zur Verfügung steht, und Neutronen eignen sich besonders gut für diese Zwecke. Im Prinzip ist es natürlich auch möglich, mit Hilfe der in Cyclotronen, Synchrotronen usw. beschleunigten Protonen, Deuteronen, He- und Kohlenstoffkernen oder durch energiereiche γ -Strahlung Radioisotope zu erzeugen. Die Ausbeute ist aber viel geringer als bei Beschuß mit Neutronen, einmal weil die elektrischen Ladungen von Geschosß und Zielkern sich stark abstoßen, zum andern, weil die Zahl der in Beschleunigern erzeugbaren Geschosße sehr klein ist. Neutronen dringen dagegen leicht in die Kerne ein, und ein Uranreaktor liefert sie in großen Mengen.

Es soll hier nur auf die Möglichkeiten eingegangen werden, die ein Kernreaktor für die Isotopenproduktion bietet. Dieser stellt für diesen Zweck vor allem Neutronen zur Verfügung, und zwar mit allen Energien von einigen MeV bis hinunter zu einigen hundertstel eV. Letztere sind die thermischen Neutronen, von denen für die Produktion radioaktiver Isotope vor allem Gebrauch gemacht wird. Ihre Energie entspricht der von Gasmolekülen bei Zimmertemperatur, und sie stehen im Reflektor in recht reiner Form zur Verfügung. In der Mitte

des Reaktors hingegen sind alle Energien vertreten. Mit der erzeugten γ -Strahlung von einigen MeV lassen sich keine Kernreaktionen erwirken. Die Protonenproduktion ist bedeutungslos, ebenso die α -Strahlung. Eine ganze Reihe von Radioisotopen speziell im Gebiet der seltenen Erden liefert der Reaktor in Form von Spaltprodukten gleich fertig, leider aber als Gemisch mit großen Strahlungsintensitäten, so daß die Aufarbeitung dieses schon an sich analytisch nicht einfach zu handhabenden Gemisches noch schwieriger wird. Der Radiochemiker betrachtet daher dieses Geschenk mit gemischten Gefühlen. Soweit das, was der Reaktor bietet.

Bei der praktischen Anwendung der Neutronen hält man sich meistens an die thermischen. Mit ihnen ist die Ausbeute am besten. Mit steigender Neutronenenergie nimmt sie ab, weil die Geschosße – bildlich gesprochen – rascher die kritische Zone um den Zielkern durchlaufen, die für den Einfang günstig ist. Beim Einfang von thermischen Neutronen reicht die dem Kern mitgeteilte Energie meist nicht aus, um ein Proton oder gar ein α -Teilchen auszustoßen, sondern sie wird als γ -Quant ausgestrahlt. Die Ordnungszahl von gebildeten und ursprünglichen Kernen ist die gleiche. Aus Gold-197 wird Gold-198. Deshalb ist es nicht möglich, die durch solche n,γ -Reaktionen entstehenden Radioisotope auf chemischem Wege vom inaktiven Material zu trennen.

Der schnellen Neutronen bedient man sich der meist schlechten Ausbeute wegen nur in vereinzelten Fällen.

Verfolgt man bei einer Bestrahlung die Zunahme der spezifischen Aktivität mit der Bestrahlungsdauer, so sieht man, daß die Kurve exponentiell ansteigt und sich einem Maximalwert nähert. Diesen bezeichnet man als Sättigungswert. Er ist proportional dem Neutronenfluß im Reaktor und dem Wirkungsquerschnitt des bestrahlten Materials. Der Wirkungsquerschnitt ist ein Maß für

die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Isotop eine Kernreaktion eingeht. Da er unbeeinflussbar ist, kann der Sättigungswert nur durch größeren Neutronenfluß erhöht werden. Ist die Bestrahlungsdauer gleich der Halbwertszeit des gebildeten Radioisotopes, so erhält man eine spezifische Aktivität von 50 % des Sättigungswertes. Nach zwei Halbwertszeiten steigt sie auf 75 %, nach sieben auf 99 % des Sättigungswertes. Es ist also praktisch wertlos, länger als sieben Halbwertszeiten zu bestrahlen.

Die Aufgaben, die sich stellen, lassen sich grob in drei Kategorien einteilen:

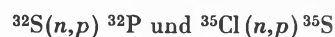
1. Aktivierung eines Elementes, das als solches oder in Form einer seiner Verbindungen vorliegt, wobei es nicht darauf ankommt, ob das Produkt mehrere Radioisotope des gewünschten oder eventuell auch eines andern Elementes enthält und wieviel inaktives Material beigemischt ist.
2. Gewinnung eines radiochemisch reinen Produktes, das jedoch inaktives Material enthalten darf. Radiochemisch rein heißt, daß nur ein einziges Radioisotop nachweisbar sein darf.
3. Trägerarme Lösungen, also solche, die nur ein Radioisotop mit so wenig wie möglich inaktivem Material enthalten sollen.

Kategorie 1 ist die einfachste. Man bestrahlt das Element als solches, als Oxyd, Carbonat oder Nitrat, da der Sauerstoff bzw. diese Anionen entweder nur sehr langsam oder zu sehr kurzlebigen Isotopen umgewandelt werden. Muß man einmal ein Anion nehmen, das stärker aktiviert wird, wie z.B. Chlorid, so läßt es sich nachher abtrennen. Oft ist es wichtig, im Ausgangsmaterial geringfügige Verunreinigungen zu entfernen, da diese wegen ihres großen Wirkungsquerschnittes stark aktiv werden und ihre Strahlung letztlich den größten Teil der Gesamtstrahlung ausmachen kann. Hat das bestrahlte Element mehrere stabile Isotope, so werden diese gemäß ihren individuellen Wirkungsquerschnitten umgewandelt. Deshalb entspricht die Zusammensetzung der gebildeten Strahlung nicht der gewichtsprozentualen Zusammensetzung im Ausgangsprodukt.

Kategorie 2 kann dann Schwierigkeiten bereiten, wenn das betreffende Elemente mehrere stabile Isotope besitzt, deren Atomgewichte nicht aufeinander folgen. So entstehen beim Bestrahlen von Zinn durch n,γ -Reaktionen die Isotope 113, 121, 123 und 125. Liegen die Halbwertszeiten weit auseinander, so gelangt man oft zu radiochemischer Reinheit, indem man durch kurze Bestrahlungszeit der Bildung des langlebigen Isotopes in merklichen Mengen zuvorkommt oder indem man nach langer Bestrahlung die Aktivität der kurzlebigen Isotope abklingen läßt. Als letzter Ausweg bleibt die Möglichkeit, von stabilen Isotopen auszugehen. Elektromagnetische Separatoren trennen besonders in den Vereinigten Staaten seit einigen Jahren Isotope in Grammquantitäten. Chemische Operationen können erforder-

lich werden, wenn die n,γ -Reaktion von anderen, vor allem von n,p -Reaktionen, konkurrenziert wird. Hier entstehen, selbst wenn man ein reines Isotop bestrahlt, zwei Radioisotope, eines besitzt jedoch eine andere Ordnungszahl.

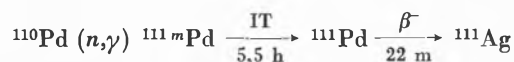
Punkt 3, die Herstellung von trägerarmen Lösungen, ist der schwierigste. Bisher standen mehrere Wege offen, deren Gangbarkeit jedoch auf jeweils wenige Fälle beschränkt war. Zunächst gibt es mit schnellen Neutronen von etwa 1 bis 3 MeV einige n,p -Reaktionen mit guter Ausbeute. Als Beispiel seien die Reaktionen



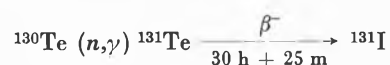
erwähnt. Beide werden für die routinemäßige Produktion gebraucht.

Die zweite Möglichkeit beruht auf dem Szilard-Chalmers-Effekt. Das von der Kernreaktion betroffene Atom wird durch den Rückstoß aus seiner Bindung mit dem Rest des Moleküls herausgerissen. So kann Brom-82 durch Bestrahlen von p -Dibrom-Benzol mit hoher spezifischer Aktivität gewonnen werden. Der Effekt läßt sich auch zur Anreicherung von ^{76}As , ^{51}Cr , ^{60}Co , ^{64}Cu , ^{55}Fe , ^{59}Fe und ^{65}Zn verwenden. Die Spaltprodukte sind eine weitere Quelle. Das so wichtige ^{90}Sr wird aus ihnen gewonnen, ebenso das ^{137}Cs , das durch Ammoniumalaun mitgefällt und so abgetrennt wird. Manchmal ist auch ein Zerfallsprodukt eines Spaltproduktes von Interesse. Ist ersteres kurzlebig, so liefert man neuerdings die Muttersubstanz in einem sogenannten «Milker». Es handelt sich dabei um eine Apparatur, die die Muttersubstanz fest gebunden hält, es aber erlaubt, die Tochtersubstanz zu eluieren. Zum Beispiel bildet das ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30$ y) durch β -Zerfall ^{137m}Ba ($T_{1/2} = 2,6$ m), das sich für industrielle Zwecke eignet. Man fixiert das Cäsium in einem Ionenaustauscher und kann das gebildete Barium mit einem geeigneten Lösungsmittel auswachen. Dasselbe Prinzip wird zur Gewinnung von ^{132}I ($T_{1/2} = 2,3$ h) aus ^{132}Te ($T_{1/2} = 3,2$ d), und von ^{90}Y ($T_{1/2} = 64$ h) aus ^{90}Sr ($T_{1/2} = 28$ y) angewendet. Solche Milker haben den Vorteil, daß kurzlebige Isotope über weite Distanzen transportiert und die Lösungen gerade im Moment des Gebrauches hergestellt werden können.

Die eben erläuterte Methode ist natürlich nicht auf die Fissionprodukte beschränkt. So erhält man z.B. ^{111}Ag durch die Reaktion



Dieses kann chemisch abgetrennt und angereichert werden. Sehr häufig gebraucht wird auch die Umwandlung

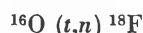


zur Gewinnung des medizinisch wichtigen ^{131}I .

In einigen Fällen ließ sich der Beschuß mit Tritiumkernen (t) anwenden, die auf Grund der Reaktion

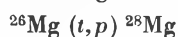


im Reaktor mit guter Ausbeute erzeugt werden können. Auf diesem Wege wird Fluor-18 hergestellt, indem man LiCO_3 bestrahlt. Die gebildeten Tritiumkerne reagieren mit dem Sauerstoff des Carbonats:



^{18}F hat eine Halbwertszeit von 112 Minuten und ist das langlebigste unter den Fluorisotopen. Verwendet man LiCO_3 , das 95 % ^6Li enthält, so kann man zu einer spezifischen Aktivität von 3 bis 4 mC/g gelangen.

Die Tritiumreaktion wird auch zur Gewinnung des einzigen Magnesiumisotopes verwendet, dessen Halbwertszeit eine Verwendung in der Tracerchemie zuläßt. Es ist das Magnesium-28 mit einer Halbwertszeit von 21,3 Stunden. Man bestrahlt in diesem Falle eine Folie aus Li-Mg-Legierung. Das verwendete Lithium ist am leichteren Isotop angereichert und enthält 95 % ^6Li . Es spielt sich die Umsetzung



ab. Man erreicht so eine Aktivität von 1 mC/g. Dass diese Umwandlung möglich ist, erstaunt im ersten Moment, da die Tritiumkerne eine maximale Energie von nur 2,73 MeV besitzen, während sie zur Überwindung der Potentialschwelle des Magnesiums theoretisch 2,88 MeV benötigen. Es müssen also Tunneleffekte im Spiel sein, die die Reaktion trotzdem ermöglichen.

Neuerdings gibt es aber Anzeichen, daß der Wunsch, jedes Isotop trägerfrei herzustellen, verwirklicht werden

kann. In den Vereinigten Staaten, in England und in Frankreich arbeitet man daran, die elektromagnetischen Separatoren auch zur Trennung radioaktiver Gemische einzusetzen. Schwierigkeiten bereitet weniger die Strahlung als die sehr schlechte Ausbeute dieser Geräte, die eine Produktion zu tragbaren Preisen noch ausschließt, doch kann sich die Lage in einigen Jahren ändern.

Der Bestrahlungsvorgang selbst ist sehr einfach. Das zu bestrahlende Material muß so in Aluminiumbüchsen verpackt werden, daß keine aktiven Produkte daraus entweichen können. Die Büchsen werden dann in den Bestrahlungskanälen einem zweckentsprechenden Flux ausgesetzt. Dabei muß dafür gesorgt werden, daß die bei den Kernumwandlungen entstehende Wärme abgeführt wird.

Der Chemiker sorgt zunächst dafür, daß geeignetes Material zur Bestrahlung gelangt. Vor allem sind es Reinheitsanforderungen, die hier eine Rolle spielen.

Nach der Bestrahlung wird ein großer Teil der Isotope gleich an den Verbraucher gesandt. Die Chemie kommt dort ins Spiel, wo Operationen zur Anreicherung des Radioisotopes ausgeführt werden. Auch die Herstellung spezieller Lösungen (kolloidales Gold), die Abtrennung von Fremdaktivität und die Aufarbeitung der Spaltprodukte ist Sache des Chemikers.

Alle Arbeiten mit solchem stark aktiven Material können nur im Hot-Labor in abgeschirmten Zellen durchgeführt werden.