

## 5 Kernreaktionen

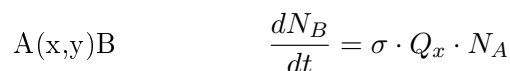
Kernreaktionen sind Prozesse, durch die Atomkerne in Wechselwirkung mit anderen Kernen, Elementarteilchen oder Photonen verändert werden. Zerfälle, die spontan stattfinden, werden nicht zu diesem Reaktionstyp gezählt. Die konventionelle Schreibweise  $A(x,y)B$  stellt in abgekürzter Form „Ausgangskern (Projektil, emittiertes Partikel) Produktkern“ dar. Das Stadium zwischen der Wechselwirkung mit dem Projektil und der Emission wird als Compoundkern bezeichnet. Die historisch erste als solche erkannte Kernreaktion war die Beobachtung der Protonenemission bei der Bestrahlung von Stickstoff mit  $\alpha$ -Teilchen aus dem Zerfall von  $^{210}\text{Po}$ , in Kurzschreibweise  $^{14}\text{N}(\alpha,p)^{17}\text{O}$  (Rutherford, 1919). Zu beachten ist, dass im Gegensatz zu chemischen Reaktionen die umgesetzten Energiebeträge um ein Vielfaches höher sein können. So werden bei der Spaltung von 1 g  $^{235}\text{U}$   $8,4 \times 10^7$  kJ, bei der Verbrennung von 1 g Kohlenstoff 33,9 kJ frei.

### 5.1 Wirkungsquerschnitte

In Analogie zur konzentrationsunabhängigen Geschwindigkeitskonstanten  $k$  für eine chemische Reaktion, bei der aus den Reaktanden  $A$  und  $B$  mit den Konzentrationen  $c_A$  und  $c_B$  die Verbindung  $D$  gebildet wird, kann der Wirkungsquerschnitt für eine bestimmte Kernreaktion beschrieben werden.



Ist  $N_A$  bzw.  $N_B$  die Anzahl der Ausgangs- bzw. Produktatome pro Volumeneinheit,  $Q_x$  der, die Reaktion auslösende Teilchenstrom und  $\sigma$  der Wirkungsquerschnitt, so gilt für die Kernreaktion



Die Messung erfolgt mit Hilfe der Abschwächung eines Teilchenstrahls nach dem Durchtreten einer Schicht von bestimmten Atomen. Der Teilchenstrom mit der Flussdichte  $Q_{x0}$  wird nach dem Durchdringen einer Schicht der Dicke  $s$  mit  $N_A$  Atomen pro Volumeneinheit und dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  nach folgender Formel auf die Flussdichte  $Q_x$  abgeschwächt:

$$Q_x = Q_{x0} \cdot e^{-\sigma N_A \cdot s}$$

## 5 Kernreaktionen

Der Wirkungsquerschnitt gibt damit die effektive Fläche an, die ein Targetkern dem Teilchenstrom für die betrachtete Reaktion bzw. für den speziellen Reaktionsverlauf entgegenstellt. Der totale Wirkungsquerschnitt ( $\sigma_{tot}$ ) setzt sich additiv aus dem Streuquerschnitt ( $\sigma_s$ ) und dem Absorptionswirkungsquerschnitt ( $\sigma_a$ ) zusammen. Diese wiederum unterteilen sich in die Wirkungsquerschnitte für die elastische ( $\sigma_{es}$ ) und inelastische Streuung ( $\sigma_{is}$ ), sowie diejenigen für Absorption ohne Spaltung ( $\sigma_c = \text{capture}$ ) und Absorption mit nachfolgender Spaltung ( $\sigma_f = \text{fission}$ ). Der Wirkungsquerschnitt wurde früher in barn ( $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ ), heute im SI in  $\text{m}^2$  angegeben.

$$\sigma_{tot} = \sigma_s + \sigma_a = \sigma_{es} + \sigma_{is} + \sigma_c + \sigma_f$$

Allgemein ausgedrückt gibt der Wirkungsquerschnitt die Wahrscheinlichkeit für den Ablauf einer bestimmten Reaktion an und hängt stark von der Energie des Projektils ab. Er kann um viele Größenordnungen über den geometrischen Querschnitt hinausgehen.

### 5.1.1 Positiv geladene Projektile

Kernreaktionen mit positiv geladenen Projektilen (Protonen, Deuteronen, Tritonen,  $\alpha$ -Teilchen, schwere Kerne) müssen, um mit einem Kern in Wechselwirkung treten zu können, den Potentialwall (Coulombschwelle  $E_C$ ) überwinden. Dieser hängt von der Anzahl der positiven Ladungen in Targetkern ( $Z_1$ ) und Projektil ( $Z_2$ ) sowie vom Kernradius  $r$  ab. Die Vakuumdielektrizitätskonstante  $\epsilon_0$  und die Elementarladung  $e$  gehen als Konstanten in die Gleichung ein.

$$E_C = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}$$

Die Coulombschwelle für die eingangs erwähnte Reaktion  $^{14}\text{N}(\alpha, p)^{17}\text{O}$  beträgt ca. 3 MeV. Für die Wechselwirkung eines  $\alpha$ -Teilchens mit einem  $^{238}\text{U}$ -Kern wären hingegen schon 24 MeV nötig. Weiters gilt die obenstehende Formel nur für sphärische Kerne, d.h. besonders die schwersten Kerne zeigen diesbezüglich beträchtliche Abweichungen. So ist z.B. die Coulombschwelle für die Verschmelzung zweier Urankerne etwa doppelt so hoch als aufgrund der Formel berechnet, nämlich 1,5 GeV.

Einen Spezialfall stellen Reaktionen mit Deuteronen dar. Die Ladungsverteilung im D-Kern erlaubt Wechselwirkungen mit Targetkernen, obwohl die Teilchenenergie unterhalb der Coulombschwelle liegt. Solche Reaktionen werden als Oppenheimer-Phillips- oder Abstreif-Reaktionen bezeichnet. In diesem Fall kommt es auch nicht zu einer Compoundkernbildung, sondern nur zur Reaktion mit dem Neutron, während das Proton weiterfliegt. Beispiele sind  $^{12}\text{C}(\text{d}, p)^{13}\text{C}$  und analog  $^{12}\text{C}(\text{d}, n)^{13}\text{N}$ .

### 5.1.2 Neutronen

Für Neutronen fällt mangels Ladung die Coulombschwelle weg, und die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit wird ausschließlich durch die charakteristischen Eigenschaften des Targetkernes bestimmt. Wie die oben behandelten Wirkungsquerschnitte setzt sich auch der Neutronenwirkungsquerschnitt aus Streu- und Absorptionsquerschnitt zusammen und ist stark von der Neutronenenergie abhängig. Trägt man den totalen Wirkungsquerschnitt über der Neutronenenergie auf, so unterscheidet man 3 Bereiche: Den niederenergetischen, in dem der Wirkungsquerschnitt mit steigender kinetischer Energie abfällt, den Resonanzbereich, wo durch Übereinstimmung von Neutronenenergie und Anregungsniveau sogenannte Resonanzen mit sehr hohen Wirkungsquerschnitten auftreten und jenen Bereich, in dem die Resonanzen wesentlich breiter werden. Mit steigender Neutronenenergie nimmt die Zahl der Resonanzen aufgrund elastischer und inelastischer Streuung rasch zu, was zu einer (wieder) glatten Funktion im Wirkungsquerschnitt führt. Der totale Wirkungsquerschnitt strebt für hohe Energien gegen den geometrischen.

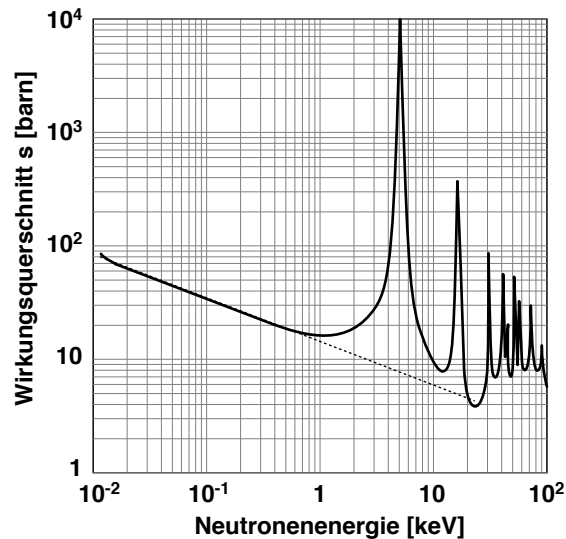


Abbildung 5.1: Wirkungsquerschnitt des Silbers mit natürlicher Isotopenzusammensetzung für Neutroneneinfang. Die erste Resonanz (5,12 eV) ist auf das Isotop  $^{109}\text{Ag}$  zurückzuführen (nach USAEC-Report AECU-4020 + suppl.)

Beim Einfang eines Neutrons erhält der Produktkern außer der kinetischen Energie auch noch die Bindungsenergie des Neutrons von etwa 8 MeV. Er befindet sich dadurch in einem angeregten Zustand. Die Energieänderung zum Grundzustand des (radioaktiven) Produktkerns erfolgt sofort durch  $\gamma$ -Emission. Diese charakteristischen Quanten werden als prompte Gammastrahlung bezeichnet und in Spe-

zialfällen (in vivo Analysen, siehe Kapitel 9) für die Analytik verwendet. Die Radionuklidherstellung erfolgt überwiegend durch (n, $\gamma$ )-Reaktionen mit thermischen Neutronen, sowie durch (n,p), (n,2n) und (n, $\alpha$ )-Reaktionen mit epithermischen und schnellen Neutronen im Reaktor.

### 5.2 Spaltung

Kernspaltung durch thermische Neutronen ist nur bei (u,u) beziehungsweise (g,u) Kernen möglich, wenn diese Kerne eine Protonenzahl  $>90$  besitzen (siehe Abschnitt 3.1.3). Andere Kerne können nur mit Neutronen ab einer charakteristischen Schwellenenergie gespalten werden (Abbildung 5.2). Entscheidend ist der Differenzbetrag zwischen der, durch den Einbau des Neutrons freiwerdenden Bindungsenergie, und der Spaltschwelle des betreffenden Kerns. Durch thermische Neutronen sind auf diese Art nur  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  spaltbar. In diesem Fall hat der Compoundkern eine (g,g)-Zusammensetzung und das letzte Neutron deshalb eine besonders hohe Bindungsenergie. Bei allem anderen Kernen muss vom Neutron zusätzliche, kinetische Energie beigetragen werden um die Spaltschwelle zu überschreiten. Die Spaltprodukte umfassen ein weites Spektrum, ihre Verteilung ist abhängig vom Target und der Neutronenenergie. Bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  treten Produkte mit Ordnungszahlen zwischen 28 (Ni) und 65 (Tb) auf. Die Nukleonenzahlen bewegen sich im Bereich von 70 bis 162. In der Mehrzahl der Fälle sind die Bruchstücke ungleich schwer, symmetrische Spaltung mit gleich schweren Bruchstücken tritt bei der Anwendung thermischer Neutronen mit nur 0,01% der Fälle auf. Mit zunehmender Neutronenenergie steigt dieser Wert an und erreicht bei 14 MeV-Neutronen ca 1%. Der Neutronenüberschuss der Spaltfragmente kann durch die Abgabe verzögerter Neutronen oder in einer (isobaren)  $\beta$ -Zerfallsreihe abgebaut werden (siehe auch Kapitel 3.3.7). Die häufigsten Spaltprodukte bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  liegen um die Massen 97 und 139.

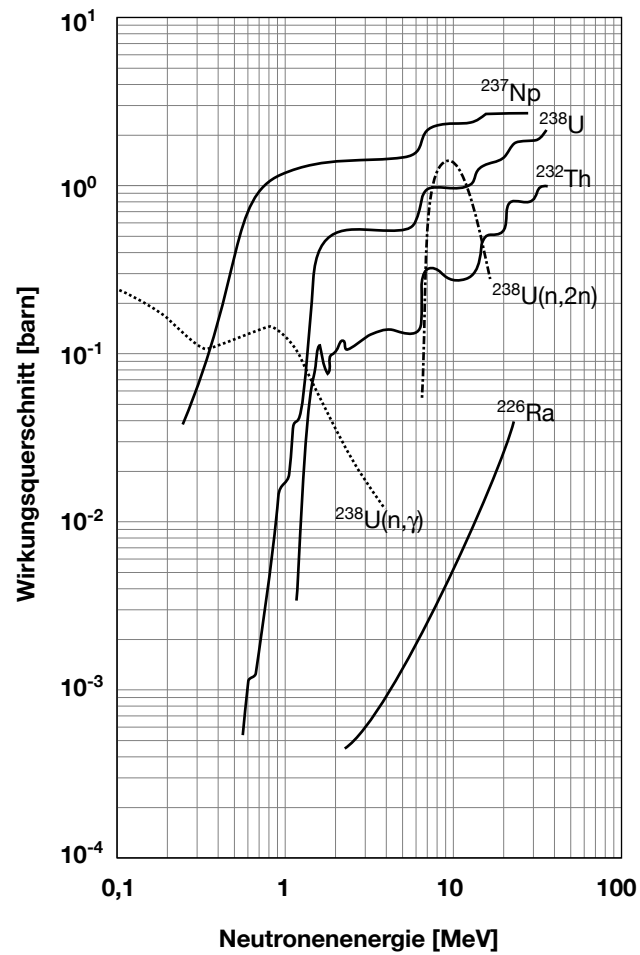


Abbildung 5.2: Wirkungsquerschnitte für die Spaltung schwerer Kerne in Abhängigkeit von der Neutronenenergie (nach L. Yaffee, Nuclear Chemistry, 1968, siehe auch 7.1)

## 5 Kernreaktionen

# 6 Chemische Reaktionen nach Kernumwandlungen

## 6.1 Kinetische Energie – Temperatur

Kernreaktionen und Kernzerfälle setzen beträchtliche Energiebeträge frei bzw. um, so dass als Folge Veränderungen der Elektronenhülle und damit chemische Reaktionen stattfinden. Zur Veranschaulichung dient die Berechnung der Temperatur  $T$  eines betroffenen Atoms mit Hilfe der Boltzmann-Konstante  $k$  ( $1,38066 \times 10^{-23}$  J/K). Ist die kinetische Energie  $E_{kin}$ , so gilt für die Temperatur  $T$ :

$$E_{kin} = \frac{mv^2}{2} = kT \quad \text{beziehungsweise} \quad T = \frac{E_{kin}}{k} = 1,160445 \times 10^4 \times E_{kin}$$

Man erhält auf diese Weise Temperaturen von  $10^4$  K pro eV kinetische Energie. Daraus leitet sich der Begriff „heiße Atome“ und „heiße Chemie“ für die Untersuchung der bei Kernumwandlungen auftretenden Reaktionen ab.

## 6.2 Szilard-Chalmers-Effekt

1934 beobachteten L. Szilard und T.A. Chalmers, dass bei Bestrahlung von Äthyljodid mit Neutronen das gebildete  $^{128}\text{I}$  zum Teil nicht mehr chemisch im Äthyljodid gebunden, sondern mit Wasser als Jodid extrahierbar war. Die entstandenen  $^{128}\text{I}$ -Kerne hatten durch ihre Rückstoßenergie die C-I Bindung gesprengt und das ursprüngliche Molekül verlassen. Seither wurde der Szilard-Chalmers-Effekt an vielen Verbindungen beobachtet und untersucht. Am Beispiel des Äthyljodids läßt sich zeigen, dass nur ein geringer Teil des entstandenen  $^{128}\text{I}$  in der organischen Phase bleibt (niedriges Retentionsvermögen). Der Grund dafür liegt in der Rückstoßenergie, die bei der Emission des prompten  $\gamma$ -Quants (4,8 MeV) der Reaktion  $^{127}\text{I} (n,\gamma) ^{128}\text{I}$  auf den emittierenden Kern übertragen wird. Diese liegt in der Größenordnung von 100 eV. Bindungsenergien zwischen Atomen bewegen sich zwischen 3 und 7 eV/Molekül (300-650 kJ/mol), die Rückstoßenergie liegt damit wesentlich höher und kann die Bindung lösen. Die Berechnung der Rückstoßenergie  $E_R$  wird am Beispiel einer  $(n,\gamma)$  Reaktion über die Impulserhaltung abgeleitet.

Die Rückstoßenergie nach einer  $\alpha$ -Emission wird analog berechnet und liegt bei gleicher Energie ca. 3 Größenordnungen höher als nach einer  $\gamma$ -Emission. Komplizierter gestaltet sich die Quantifizierung nach  $\beta$ -Emissionen. Die Energie des  $\beta$ -Zerfalls verteilt sich auf das  $\beta$ -Teilchen und das dazugehörige Neutrino, der

## 6 Chemische Reaktionen nach Kernumwandlungen

Emissionswinkel ist zufällig, die Rückstoßenergie daher ebenfalls. Weiters muß die relativistische Massenzunahme des  $\beta$ -Teilchens bei hohen Energien berücksichtigt werden. In der Praxis kann man von Rückstoßenergien in der Größenordnung von 10-100 eV ausgehen (Masse 100 u, 2 MeV).

### Beispiel

$$\begin{aligned}m_1 v_1 &= m_2 v_2 \\E_\gamma &= m_\gamma c^2 \\m_\gamma &= \frac{E_\gamma}{c^2} \\m_1 v_1 &= \frac{E_\gamma}{c^2} \cdot c \\m_1^2 v_1^2 &= \frac{E_\gamma^2}{c^2} \\E_R &= \frac{mv^2}{2} = \frac{E_\gamma^2}{2mc^2}\end{aligned}$$

Einen speziellen Fall stellt die als Augerexplosion bezeichnete Zersetzung einer gasförmigen Verbindung nach einem Zerfall und Augerelektronenemission dar. In der Folge einer Augerkaskade ändert sich die Ladungsverteilung in einem Molekül so stark, dass die elektrostatischen Kräfte die Verbindung trennen. Ein Beispiel ist die Zersetzung von Methyljodid beim Einsatz von  $^{125}\text{I}$ , das mit 60 Tagen Halbwertszeit durch Elektroneneinfang zu  $^{125\text{m}}\text{Te}$  ( $T_{1/2} = 1,6\text{ns}$ ) und dieses zu 93% durch innere Konversion in den Grundzustand übergeht. Diese Übergänge können zur Emission von 2-18 Augerelektronen führen und die Augerexplosion auslösen.

## 6.3 Anwendungen

Unter der Voraussetzung, dass die Rückstoßatome in geeigneter chemischer Form freigesetzt werden (andere Wertigkeit, Aggregatzustand etc.) und sich nicht durch Isotopenaustausch wieder vermischen, kann der Szilard-Chalmers-Effekt zur Erzeugung hoher spezifischer Aktivitäten verwendet werden. Bestrahlt man besonders feine Schwefelpartikel, können die durch (n,p)-Reaktion entstandenen  $^{32}\text{P}$ -Atome durch Rückstoß diese Partikel verlassen und mit warmem Wasser entfernt werden. Durch wiederholte Aktivierung können mit diesem Verfahren routinemäßig Aktivitäten von 37 MBq  $^{32}\text{P}$  / ml (1 mCi / ml) hergestellt werden. Hohe spezifische Aktivitäten werden vor allem für medizinische und biologische Anwendungen gebraucht, da oft aus toxikologischen Gründen nur geringste Mengen an Tracern verabreicht werden dürfen. Geeignet für analoge Abtrennungen sind vor allem metallorganische Verbindungen wie Dibenzol-Chrom und stabile Chelate wie EDTA-Komplexe. Aus anorganischen Verbindungen können speziell Ionen gewonnen werden, die mehrere Wertigkeitsstufen aufweisen. Beispiele sind:  $\text{KMnO}_4$



zur Produktion von  $^{56}\text{Mn}$ ,  $\text{K}_2\text{CrO}_4$  für  $^{51}\text{Cr}$ ,  $\text{NaClO}_4$  für  $^{38}\text{Cl}$  und  $\text{KIO}_4$  für  $^{128}\text{I}$ . Ein bestimmter Teil der aktivierten Atome verbleibt trotz Rückstoß in der ursprünglichen Verbindung. Das ist darauf zurückzuführen, dass die Überhitzung äußerst kurz dauert und in Abhängigkeit von den Gittereigenschaften des betreffenden Materials die Atome nach dem Zerfall an ihrem angestammten Gitterplatz „festgehalten“ werden. Auch sekundäre Ausheilungsprozesse in Kristallgittern und Rekombinationen können beobachtet werden (Isotropisierung natürlich radioaktiver Mineralien). Ersteres kann durch Erhitzen noch weiter begünstigt werden. Kernreaktionen können direkt zur Erzeugung radioaktiv markierter Verbindungen genutzt werden. Am Beispiel der Reaktion  $^{14}\text{N}(\text{n,p})^{14}\text{C}$  kann gezeigt werden, dass neben dem eigentlichen Produkt,  $^{14}\text{C}$ -markierter Benzoesäure, durch Rückstoßreaktionen auch eine Reihe anderer Verbindungen produziert werden. Das entstandene  $^{14}\text{C}$  Atom verfügt über eine kinetische Energie von 45 keV und gibt diese anfänglich durch Elektronenanregung, Ionisierung, Rutherford-Streuung, später (ab ca. 6 keV) durch elastische und inelastische Stöße an die Umgebung ab. Analog wird auch die Reaktion  $^6\text{Li}(\text{n},\alpha)\text{T}$  genutzt. Die Produkte müssen nach der Bestrahlung entsprechend den Anforderungen gereinigt werden. Dieses Verfahren wird auch als unspezifische Rückstoßreaktion bezeichnet.

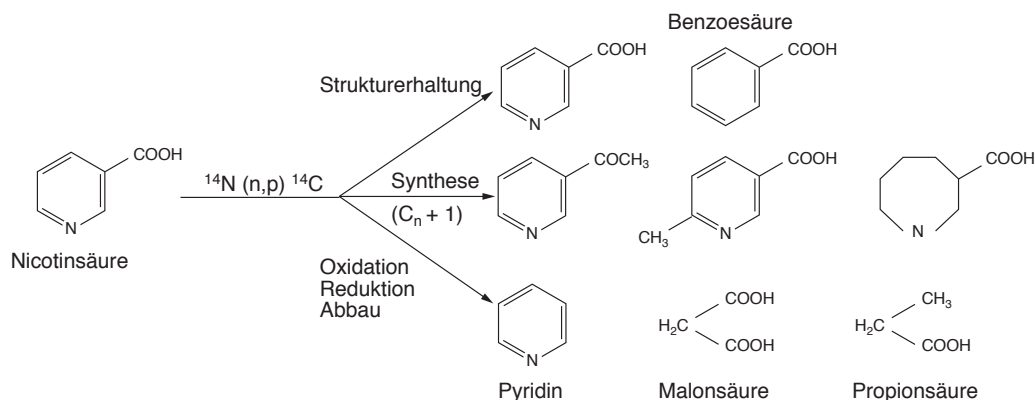


Abbildung 6.1: Verbindungen, die nach der Bestrahlung von Nicotinsäure mit thermischen Neutronen beobachtet werden (nach Keller, 1993)

Rückstoßreaktionen werden auch gezielt für die Herstellung von Ausgangsprodukten für Radiodiagnostika benutzt. Durch die Verwendung eines Protonenbeschleunigers können in Gemischen von Gasen wie  $\text{N}_2+\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2+\text{H}_2$  oder  $\text{N}_2+\text{HI}$  markierte Verbindungen produziert werden. Durch die Reaktion  $^{14}\text{N}(\text{p},\alpha)^{11}\text{C}$  und die darauf folgenden Rückstoßreaktionen entstehen Verbindungen wie  $^{11}\text{CO}_2$ ,  $^{11}\text{CH}_4$  und  $^{11}\text{CH}_3\text{I}$ , die über weitere einfache Reaktionen in die gewünschten Moleküle eingebaut werden können.  $^{11}\text{C}$  ist ein Positronenstrahler und hat, wie auch  $^{18}\text{F}$ , große Bedeutung im Zusammenhang mit der Positronen-Emissionstomographie (PET) erlangt (siehe Kapitel 9).

## 6 *Chemische Reaktionen nach Kernumwandlungen*