

1949

⁵²Mn és ^{155,156}Tb radioizotópok ciklotronnal végzett előállítása és tisztítása, valamint kukorica palánták fenotipizálása ⁵²Mn radioizotóppal miniPET kamera és gamma spektrométer felhasználásával

Egyetemi doktori (PhD) értekezés

a szerző neve: Brezovcsik Károly témavezető neve: Dr. Szűcs Zoltán

DEBRECENI EGYETEM Természettudományi és Informatikai Doktori Tanács Kémiai Tudományok Doktori Iskola Debrecen, 2022

Ezen értekezést a Debreceni Egyetem Természettudományi és Informatikai Doktori Tanács Kémiai Tudományok Doktori Iskola K/4 programja keretében készítettem a Debreceni Egyetem természettudományi/műszaki doktori (PhD) fokozatának elnyerése céljából.

Nyilatkozom arról, hogy a tézisekben leírt eredmények nem képezik más PhD disszertáció részét.

Debrecen, 2022. augusztus

a jelölt aláírása

Tanúsítom, hogy Brezovcsik Károly doktorjelölt 2015-2018 között a fent megnevezett Doktori Iskola K/4 programjának keretében irányításommal végezte munkáját. Az értekezésben foglalt eredményekhez a jelölt önálló alkotó tevékenységével meghatározóan hozzájárult. Nyilatkozom továbbá arról, hogy a tézisekben leírt eredmények nem képezik más PhD disszertáció részét. Az értekezés elfogadását javasolom.

Debrecen, 2022. augusztus

a témavezető aláírása

⁵² Mn és ^{155,156} Tb radioizotópok ciklotronnal végzett előállítása, tisztítása
és kukorica palánták fenotipizálása 52Mn radioizotóppal miniPET
kamerával és gamma spektrométerrel
Értekezés a doktori (Ph.D.) fokozat megszerzése érdekében
a kémiai tudományágban

Írta: Brezovcsik Károly okleveles vegyész

Készült a Debreceni Egyetem Kémiai Tudományok doktori iskolája (Makromolekuláris és felületi kémia programja) keretében

Témavezető: Dr. Szűcs Zoltán

A doktori szigorlati bizottság:

elnök:	Dr. Kéki Sándor	
tagok:	Dr. Molnár Mihály	
	Dr. Nagy Gábor	

A doktori szigorlat időpontja: 2022. április 26.

Az értekezés bírálói:

Dr	
Dr	
Dr	

A bírálóbizottság:

elnök:	Dr	•••••
tagok:	Dr	

Az értekezés védésének időpontja: 20....

Köszönetnyilvánítás

Hálával tartozom témavezetőmnek, Dr. Szűcs Zoltánnak a munkám során nyújtott segítségéért, irányításáért és tanácsaiért, amelyek rendkívül hasznosak voltak a tématerület mélyebb megismerésében.

Köszönettel tartozom Dr. Kovács Zoltánnak és Dr. Szelecsényi Ferencnek a terbium radioizotópokkal végzett munkám során kapott támogatásokért, tanácsokért és segítségekért.

Szeretném megköszönni az Atommagkutató Intézet Ciklotron Laboratórium munkatársainak, Dr. Fenyvesi Andrásnak, Dr. Sarkadi-Pribóczki Évának, Dr. Ditrói Ferencnek, Dr. Takács Sándornak, Dr. Bíró Barnának, Murvai Gergőnek, Tóth Norbertnek és Szenczi Gábornak a támogatásukat, segítségüket.

Köszönettel tartozom az Atommagkutató Intézetben dolgozó ciklotron operátoroknak a radioizotóp termelésben nyújtott közreműködésükért.

Hálával tartozom a Debreceni Egyetem, Mezőgazdaság-, Élelmiszertudományi és Környezetgazdálkodási Kar, Növénytudományi Intézet, Alkalmazott Növénybiológiai nem önálló Tanszékén dolgozó Dr. Veres Szilviának és Csákyné Faragó Erzsébetnek a kukorica palántákkal kapcsolatos tanácsokért és segítségékért.

Szeretnék köszönetet mondani Dr. Molnár Józsefnek, Dr. Király Beátának, Varga Máténak és Nagy Álmos Tasnak a miniPET kamerával kapcsolatos segítségekért.

Köszönet a K108669 OTKA pályázatnak a támogatásért.

Ezt a munkát az Európai Regionális Fejlesztési Alap és Magyarország költségvetése támogatta a GINOP-2.2.1-15-2016-00012 projekt keretében.

Szeretnék köszönetet mondani a családomnak, barátaimnak a munkám során nyújtott támogatásukért és biztatásukért.

Tartalomjegyzék

Be	Bevezetés1				
1	Iroda	almi áttekintés	5		
	1.1	Radioizotópok előállításának történelme	5		
	<i>1.2</i> 1.2.1	<i>Részecskegyorsítók</i> Ciklotron	6 7		
	1.3 1.3.1 1.3.2 1.3.3	<i>Céltárgyak típusai</i> Gáz target Folyadék target Szilárd target	8 .10 .11 .12		
	1.4 1.4.1 1.4.2 1.4.3 1.4.4 1.4.5	Szilárdcéltárgy készítési eljárások Préselés Szedimentáció Párologtatás Elektrolízis Ritkaföldfémek elektrolízise	<i>12</i> 13 13 14 15 .15		
	1.5	Radioizotóp generátorok	16		
	1.6 1.6.1	<i>Terbium radioizotópok</i> Lantanidák elválasztása	<i>16</i> 19		
	1.7	Mangán-52	19		
	1.8 1.8.1	Növények tápanyag igénye Polietilén-glikol (PEG) hatása a tápanyag felvételre	<i>21</i> 22		
	1.9	Fenotipizálás	.24		
	1.10	Növények vizsgálata	.25		
	1.11	Gamma spektrometria	.27		
	1.12	MiniPET kamera	28		
2	Kíséı	rleti körülmények és vizsgálati módszerek	.32		
	2.1	Felhasznált anyagok és vegyszerek	32		
	2.2	Besugárzások	33		
	2.3	Gd céltárgy készítése	34		
	2.4 2.4.1 2.4.2 2.4.3	Elválasztási kísérletek Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól Dy ³⁺ elválasztása Tb ³⁺ -tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól	<i>36</i> 36 38 39		
	2.5 2.5.1	Növénykísérletek Növény egyedek előállítása	<i>40</i> .40		

	2.5.2	Optimális oldatméret és pH hatás a növény kísérleteknél	
	2.5.3	MiniPET kamera tesztelése levegőn lévő tárgy megjelenítésére	
	2.5.4	MiniPET kamera látóterének felmérése 52Mn radioizotóppal	44
	2.5.5	Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata 52Mn-vel növényekben	l
	miniPET	kamerával	45
	2.5.6	Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵² Mn-vel növényekben	gamma
	spektron	néterrel	47
	2.5.7	¹⁸ F felvétel vizsgálata kukorica palántákban miniPET kamerával,	
	összehas	sonlítva a ⁵² Mn felvétellel	49
	2.5.8	Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵² Mn-vel növényekben	l
	miniPET	-el különböző PEG tartalom mellett	51
	2.5.9	Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵² Mn-vel növényekben	gamma
	spektron	néterrel különböző PEG tartalom mellett	
	2.5.10	Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ³² Mn-vel növényekl	ben
	gamma s	spektrométerrel különböző PEG tartalom mellett, PEG tartalmú és	1deál1s
	tápoldati	ban nevelt minták összehasonlítása	
	2.5.11	Idealistol eltero homerseklet hatasanak vizsgalata a kukorica p	alantak
	mangan((II) felvetelere gamma spektrometerrel.	
	2.3.12	Kukorica palantak mangan(11) felvetelenek vizsgalata ejszakal	52
	SZAKASZC	an gamma spektrometerrei	
	2.3.15	Csokkentett tenyintenzitas natasanak vizsgatata a kukorica pai	
	gamma s	speки описiенет	
2			- 4
3	Kísérlet	i eredmények és kiértékelésük	54
3	Kísérlet3.1Ga	i eredmények és kiértékelésük l elektrolizis eredmények	54 54
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ^a	i eredmények és kiértékelésük l elektrolizis eredmények választási eredménvek	54 54
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ^a 3.2.1 Ga	i eredmények és kiértékelésük l elektrolizis eredmények választási eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán	
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ² 3.2.1 3.2.2	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények választási eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá	
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények választási eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá conlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon	
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények választási eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól	54 54 56 56 gának 58 58 59
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények választási eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól	54 54 56 gának 58 59 61
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények választási eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá conlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól <i>ivénvkísérletek eredménvei</i>	
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ^a 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Ná 3.3.1	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények választási eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól <i>ivénykísérletek eredményei</i> Optimális oldatméret meghatározása	54 56 56 gának 58 59 61 65
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények választási eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól ivénykísérletek eredményei Optimális oldatméret meghatározása pH vizsgálat	54 56 56 56 gának 58 59 61 65 65
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól <i>ivénykísérletek eredményei</i> optimális oldatméret meghatározása pH vizsgálat MiniPET kamera tesztelése levegőn lévő tárgy megjelenítésére	54 56 56 56 56 gának 58 59
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól <i>Svénykísérletek eredményei</i> optimális oldatméret meghatározása pH vizsgálat MiniPET kamera tesztelése levegőn lévő tárgy megjelenítésére MiniPET kamera látóterének felmérése ⁵² Mn radioizotóppal	54 56 56 56 56 58 59 59 59 61 65 65 65 67 68 69
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól <i>Svénykísérletek eredményei</i> optimális oldatméret meghatározása pH vizsgálat MiniPET kamera tesztelése levegőn lévő tárgy megjelenítésére MiniPET kamera látóterének felmérése ⁵² Mn radioizotóppal Különböző típusu kukorica palánták mangán(II)-felvételének nyo	54 56 56 56 56 58 59 59 59 59 59 50 61 65 65 65 65 65 67 68 59 69 90000-
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 3.2.4 3.3 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5 követése	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól <i>ivénykísérletek eredményei</i> optimális oldatméret meghatározása pH vizsgálat MiniPET kamera tesztelése levegőn lévő tárgy megjelenítésére MiniPET kamera látóterének felmérése ⁵² Mn radioizotóppal Különböző típusu kukorica palánták mangán(II)-felvételének nyo	54 56 56 56 56 58 59 58 59 61 65 65 65 65 65 67 68
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5 követése 3.3.6	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények Tb ³⁺ elválasztása Gd ³⁺ -tól analitikai méretű kolonnán Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonysá sonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól Mn ²⁺ elválasztása Cr ³⁺ -tól ivénykísérletek eredményei Optimális oldatméret meghatározása pH vizsgálat MiniPET kamera tesztelése levegőn lévő tárgy megjelenítésére MiniPET kamera látóterének felmérése ⁵² Mn radioizotóppal Különböző típusu kukorica palánták mangán(II)-felvételének nyo miniPET kamerával	54 56 56 56 56 58 59 59 59 61 65 65 65 65 67 68 69 mon- 70 0000-
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5 követése 3.3.6 követése	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények	54 56 56 56 56 56 59 59 59 59 59 59 59 59 59 61 65 65 65 65 67 68 69 90 00 70 70 90 00 73
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5 követése 3.3.6 követése 3.3.7	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények	54 56 56 56 56 58 59 59 59 61 65 65 65 65 65 67 68 68 59 0000 70 0000 73
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5 követése 3.3.6 követése 3.3.7 összehas	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények	54 56 56 gának 58 59 61 65 65 65 67 67 68 69 mon- 70 0000- 73 73
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5 követése 3.3.6 követése 3.3.7 összehas 3.3.8	 i eredmények és kiértékelésük	
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5 követése 3.3.6 követése 3.3.7 összehas 3.3.8 felhaszna	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények	
3	Kisérlet 3.1 Ga 3.2 El ⁴ 3.2.1 3.2.2 összehas 3.2.3 3.2.4 3.3 Na 3.3.1 3.3.2 3.3.3 3.3.4 3.3.5 követése 3.3.6 követése 3.3.7 összehas 3.3.8 felhaszna 3.3.9	i eredmények és kiértékelésük d elektrolizis eredmények	54 56 56 gának 58 59 61 65 65 65 67 68 69 0mon- 70 0mon- 73 76 79

	3.3. gan tápo 3.3. mai 3.3. sza 3.3. gan	 Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵²Mn-vel növényekben nma spektrométerrel különböző PEG tartalom mellett, PEG tartalmú és no oldatban nevelt minták összehasonlítása	rmál 88 nták 90 93 ákra 95
4	Öss	szegzés	97
5	Sui	mmary	. 101
	5.1	Gadolinium Targeting	. 101
	5.2	Gadolinium(III), Terbium(III), Dysprosium(III) separation	. 102
	5.3	⁵² Mn separation	. 103
	5.4	Plant experiments	. 104
6	Iro	odalomjegyzék	. 107
7	Me	ellékletek	.118
	7.1	1. számú melléklet	. 118

Bevezetés

A radioizotópok felfedezése csupán a XIX század végén történt[1], biológia rendszerekben nyomjelző anyagként való használatukat pedig a magyar Nobel díjas, Hevesy György vizsgálta először[2]. Felhasználási körük igen széles, mivel könnyen detektálhatóak rendkívül kis mennyiségben is, ugyanakkor nem befolyásolják a megfigyelt fizikai, kémiai, biológiai folyamatot. A mesterségesen előállított radioizotópok felhasználási területei közül a legközismertebb az orvosi alkalmazásuk, de jelentős szerepet játszanak egyéb, például ipari területeken[3].

A rákos megbetegedések napjainkban a vezető halálokok közé tartoznak. A tumoros sejtek megtalálására, illetve terápiájára kiválóan alkalmasak a radioizotópokkal jelzett antitestek, fehérjék, peptidek, nanotestek[4], [5]. Többféle radioizotópot használnak az orvosi gyakorlatban rutinszerűen diagnosztikai vizsgálatokhoz (pl.: ¹⁸F, ¹¹C, ^{99m}Tc[6], [7]) és számos radioizotóppal (pl.: ⁵²Mn, ⁶⁸Ga, ¹⁵²Tb) folynak kutatások jobb eredmények elérése érdekében. Az ilyen készítményekkel végzett vizsgálatoknak nagy előnye, hogy non-invazív, sebészeti beavatkozást nem igényelnek. A bejuttatott radioizotóptól függően egyfoton emissziós tomográffal (SPECT), gamma sugárzó radioizotópok esetén vagy pozitron emissziós tomográffal (PET), pozitron sugárzó radioizotóp esetén végezhetőek diagnosztikai vizsgálatok. А készítményben az alkalmazott radioizotópot béta, alfa, Auger elektron sugárzóra cserélve terápia végezhető velük[8].

A diagnosztikai radioizotópok mellé terápiás párokat szoktak rendelni. Ezeknél a pároknál az elemek hasonló kémiai viselkedése alapján feltételezik, hogy a diagnosztika során kapott képpel megegyező lesz a

1

terápiás izotóp felhalmozódása is. Ebben a folyamatban nagy előny, ha nem két különböző elemet használunk, hanem ugyanazon elem másik radioizotópját. Ilyen lehetőségekből azonban csak nagyon kevés van. A terbium egy olyan speciális elem, amely radioizotópjai között megtalálható mindegyik típus: ¹⁵⁵Tb SPECT vizsgálatokhoz, ¹⁵²Tb PET vizsgálatokhoz, ^{149,161}Tb terápiára. Az előbb felsorolt izotópok mesterségesen állíthatóak elő: a ^{149,152,155}Tb részecskegyorsítóval, míg a ¹⁶¹Tb neutron besugárzással[9].

A rutinszerű izotóp termelés előtt, a termelés optimalizálása érdekében hatáskeresztmetszet méréseket kell végezni, hogy megtaláljuk azt az optimális energia tartományt a besugárzó részecskének, ahol az általunk előállítani kívánt izotóp maximális mennyiségben képződik, míg a mellékreakciók, amelyek szennyeződést okozhatnak, mennyisége minimális. Erre alkalmas módszer az úgynevezett "szendvics" technika, amikor a target anyagként használt elemből nagyszámú vékony céltárgyat kell készíteni, amelyeket különböző energián besugározva a képződő izotópok fajtái és mennyiségük meghatározható és a hatáskeresztmetszet görbe felrajzolható[10]. A pre-klinikai, klinikai kísérletek esetében minimálisan MBq nagyságrendben van szükség az adott radioizotópra. Mivel ritka az olyan elem, amelyiknek csak 1 stabil izotópja van, ezért a legtöbb esetben nélkülözhetetlen az elem egy adott izotópjára dúsított céltárgyakat használni. Az én méréseimre alkalmas, kereskedelmi forgalomban kapható gadolíniumból készült céltárgyak kizárólag természetes izotóp összetételű gadolíniumból készülnek, ezért szükséges volt olyan módszert kidolgoznom, amivel a mérések elvégezhetőek.

A mezőgazdaságban és az agrokémiai kutatásokban sem ismeretlenek a radioizotópok. Különböző növények (pl.: árpa, búza)

2

számára nélkülözhetetlen elemek felvételét már figyelték meg radioizotópok segítségével. A kukorica növény számára esszenciális makroelemek a szén, nitrogén, oxigén, foszfor, illetve mikroelemek a vas, mangán, réz, cink, bór, molibdén, nikkel, klór[11]. Ezen elemek felvételének sebességén és a felvett mennyiségen keresztül a kukorica egészségi állapotára következtethetünk.

A mangán(II) több helyen játszik szerepet a kukorica életében, főként enzimek kofaktoraként; a fotoszintézis során a víz felhasítását végzi, amit később a növény a szénhidrátok szintéziséhez fel tud használni. Mivel nélkülözhetetlen elem, ezért alkalmas lehet a különböző kukorica fajták megkülönböztetésére (például stressztűrő képességük alapján), kategorizálására (fenotipizálásra), költség-hatékonyan és gyorsan[12].

A doktori munkám során a célom az volt, hogy a terbium termelések során a későbbi dúsított anyaggal történő munkára felkészülve és a hatáskeresztmetszet mérésekhez kellően stabil, vékony 2-5 µm vastag céltárgyak készítésének módszerét kidolgozzam. A klinikai kísérletekhez történő izotóp előállításhoz viszont az elektrolizált céltárgy vékony, így préselt tablettát használtam. Ebben az esetben nagyobb tömegű kiindulási anyagra van szükség, ezért ki kellett dolgoznom egy módszert, amivel a nagyobb tömegű Gd₂O₃ tablettából (200-400 mg) származó anyagtól tisztítom meg a termelt terbiumot az oszlop méretének minimalizálása mellett. A folyamatot, az eddig alkalmazott, preparatív oszlop helyett, analitikai méretű HPLC oszlopra dolgoztam ki. Új terbium előállítási útvonalként megpróbálkoztam a terbium céltárgy besugárzása során keletkező diszpróziumot megtisztítani, majd ennek lebomlása során keletkező terbiumot is felhasználni.

A fentiek mellett a ciklotronnal termelt radioizotópok agrokémiai felhasználásával foglalkozom. A különböző növényi egyedek úgynevezett hibridjei között találunk jobban és rosszabbul teljesítőket is. Bizonyos külső hatások (szárazság, hőmérsékelt változás, fényhiány) által kiváltott változások megfigyelhetők a tápanyagfelvételben, amelyeken keresztül az adott növény hibrid ellenállóképességére következtethetünk. Célom egy módszer olyan kidolgozása volt, amely során miniPET kamerával és/vagy gamma spektrométerrel lehetővé válik a hibridek megkülönböztetése a kukorica palánták mangán(II)-felvételén keresztül.

1 Irodalmi áttekintés

1.1 Radioizotópok előállításának történelme

A természetben számos radioizotóp fordul elő. Ezek nagyrésze hosszabb felezési idejű, jellemzően gamma, negatív béta vagy alfa sugárzást bocsátanak ki. A különböző kémiai, biológiai, orvosi kutatások, illetve diagnosztikai betegvizsgálatok, terápiák során a természetben előforduló radioizotópok választéka nem elegendő, illetve csak ezek használata lecsökkentené az alkalmazhatóságukat a kémiai forma, bomlás típus és a felezési idejük miatt. Ezekre a problémákra nyújtanak megoldást a mesterségesen előállított radioizotópok. A történelem során először a Curie házaspár állított elő mesterségesen radionuklidot 1934-ben polóniumból származó alfa részecskékkel B és Al céltárgyak bombázásával, ¹³N és ³⁰P radioizotópokat ¹⁰B(α ,n)¹³N és ²⁷Al(α ,n)³⁰P Hamarosan elkészültek az első magreakciókkal[13]. részecske gyorsítók[14] és a tudósoknak lehetőségük nyílt proton, deuteron és alfa részecskék segítségével számos új elemet és radioiozotópot előállítani. Az 1. ábra látható a ma ismert izotópokból készült táblázat.



1. ábra ma ismert izotópokról készült 2 dimenziós táblázat, amelyben fekete sáv jelöli a stabil izotópokat, kékkel a negatív béta bomlókat, zölddel az elektron befogással és a pozitron bomlókat, sárgával az alfa sugárzókat, narancssárgával a proton bomlókat, magentával a neutron sugárzókat[15]

Ezzel lehetőséget kapunk arra, hogy a megválasszuk, hogy melyik elem milyen bomlású radioizotópjára van szükségünk. A megnövekedett választék lehetővé tette a radioaktív izotópok elterjedését a világban és mára már mindennapossá váltak a velük végzett orvos diagnosztikai és terápiás eljárások.

1.2 Részecskegyorsítók

Részecskegyorsítónak nevezünk minden olyan eszközt, amely, elektromosan töltött atomi vagy szubatomi részecskék nyalábját állítja elő kinetikai energiájuk megnövelésével[15]. A fizikusok gyorsítókat használnak az atommagok szerkezetére, a nukleáris erők és a természetben nem található atommagok tulajdonságaira vonatkozó alapkutatásokban, mint például a transzurán elemek és más instabil elemek esetében. Ezen kívül számos helyen hasznosítják még a gyorsítókat, mint például radioizotóp gyártáshoz és sugárterápiához az orvosi gyakorlatban; ipari radiográfiához, biológiai anyagok sterilizálásához. A legnagyobb gyorsítókat az alapvető szubatomi részecskék kölcsönhatásainak kutatásában használják[16].

A részecskegyorsítók sokféle formában és méretben léteznek, de a legkisebb gyorsítóknak is közös elemei vannak a nagyobb készülékekkel. Először is, minden gyorsítónak rendelkeznie kell olyan forrással, amely elektromosan töltött részecskéket generál: elektronokat, protonokat, nehézionokat. A proton nyalábokat hidrogén gáz, deuteront a deutérium gáz, ³He nyalábot ³He gáz és az alfa nyalábot He gáz ionizációjával állítják elő. Sok esetben negatív töltésű hidrogén ion nyalábot használnak, amely könnyebben kezelhető. Ezt a nyalábot a két atomos hidrogén gáz ionizációjából nyerik. A gyorsítóból való kilépés előtt egy fólia

segítségével megszabadítják a negatív töltéstől és proton nyalábként ütköztetik a céltárggyal.

Minden gyorsítónak elektromos mezővel kell rendelkeznie a részecskék felgyorsításához, és mágneses mezővel kell rendelkeznie a részecskék útjának szabályozásához.

Ezenkívül a részecskéknek jó vákuumban kell áthaladniuk, hogy elkerüljék a más gázatomokkal, molekulákkal az idő előtti ütközést, a nyaláb lefékeződését és szóródását. Végül minden gyorsítónak rendelkeznie kell valamilyen eszközzel a részecskék észlelésére, számlálására és mérésére, miután azokat felgyorsították[17].

1.2.1 Ciklotron

A magyar származású Szilárd Leó ötlete volt a ciklotron. Ernest Orlando Lawrence és M. Stanley Livingston fejlesztették ki 1930-as években. Ez a berendezés volt az első, ami elég nagy energiájú részecskéket szolgáltatott az atommagkutatáshoz. A működésének alapja, hogy az egy adott tömegű részecske egy teljes kört minden energiánál azonos idő alatt tesz meg, vagyis izokronok. Ez teszi lehetővé a részecskék gyorsítását. A ciklotron fő részei hasonlóak a korábban említett részecskegyorsítók részeivel, viszont ebben az esetben a részecskék két úgynevezett dee között gyorsulnak, amelyre feszültséget kapcsolva, a polaritásukat megfelelő frekvencián változtatjuk, miközben mágneses tér segítségével a részecskéket körpályára kényszerítjük. Az ionforrás a két dee között található[17], [18]. Az orvosi gyakorlatban 18 MeV energiájú protonok előállítására szolgáló ciklotronokat használnak, amelyek nyalábárama az 0,5 milliampert is eléri[19].

Néhány példa ciklotronnal előállítható radioizotópokra és lehetséges felhasználásukra az 1. számú mellékletben található táblázatban látható.

1.3 Céltárgyak típusai

A korábbi fejezetben bemutatott forrásból származó nagyenergiájú részecske nyalábokat leggyakrabban valamilyen radioizotóp előállításához vagy fizikai kutatásokhoz használják. Az így keletkezett radioizotópokat fizikai, kémiai, orvosi kutatásokban és gyakorlatban, az iparban hasznosítják. A folyamat során a nyalábot egy olyan céltárggyal (target anyaggal) ütköztetik, amely tartalmazza a kívánt magreakcióhoz szükséges elemet. A következő szempontokat kell figyelembe venni a céltárgyak megtervezésekor:

a) a nukleáris adatok (a magreakciók hatáskeresztmetszete) részletes áttekintése az energia és a céltárgyvastagság meghatározásához

b) a cél- és a hordozóanyag kiválasztása hővezető képesség és az előállított izotóp reakcióképessége, elválaszthatósága alapján

c) hatékony hűtés, valamint a céltárgy és az ablak stabilitása

d) hordozóanyagból származó szennyező radioizotópok keletkezése

A kiindulási anyag (target) többféle formában lehet jelen. A target halmazállapotát a felhasznált vegyületek tulajdonságai, illetve a további felhasználási mód szabja meg. Lehetőségünk van választani gáz, folyadék és szilárd targetek közül halmazállapot alapján[20], [21].

A targetet a felhasználni kívánt radioizotóp határozza meg. A radioizotóp kiválasztása során figyelembe kell venni a:

1) Felezési időt

Orvosi alkalmazás esetén figyelni kell arra, hogy a sugárzás csak a feltétlenül szükséges ideig érje a betegeket. Az in-vivo (testen belüli) diagnosztikai eljárások során a néhány napnál hosszabb felezési idő rendelkező radioizotópot csak ritkán alkalmaznak. Leggyakrabban a ¹⁸F-ot használják, aminek 109 perc a felezési ideje, de gyakori a ¹¹C alkalmazása is, 20 perces felezési idejével[8]. Terápiás felhasználás során már szélesebb tartományban mozog a felezési idő, attól függően, hogy a módszer során meddig tart amíg a radioizotóp célba jut (antitestek jelzése esetén ez akár 1-2 nap is lehet, affibody-k jelzése esetében néhány óra).

Egyéb ipari felhasználások során sokkal szélesebb skálán mozognak az alkalmazott felezési idők attól függően, hogy a megfigyelni kívánt folyamat mennyi időt igényel. Itt a néhány percestől akár több hónapos felezési idejű radioizotópok is használhatóak[22].

2) Kibocsátott sugárzás típusát

A felezési idő mellett a legfontosabb a bomlás típus, illetve a kibocsátott részecskék típusa. Orvosi felhasználás esetén a diagnosztika során az alacsony energiájú gamma sugárzókat vagy a pozitron sugárzó radioizotópokat (utóbbinál a pozitron annihilációja során keletkező 2db 511 keV energiájú gamma fotont adja a jelet) használják, melyek energiájukat nem a testben adják le, képesek kijutni belőle. Terápia során olyan részecskére van

szükségünk, ami energiáját testen belül adja le, lehetőleg minél rövidebb úton. Erre a célra negatív béta sugárzókat[5] (amelyek maximum 10 mm körüli távolságot képesek megtenni), alfa sugárzókat[5] (melyek maximum 0,1 mm körüli távolságot képesek megtenni) vagy Auger elektron kibocsátókat[5], [23] (melyek néhány nm-es távolságot képesek megtenni) használnak. Ipari és egyéb felhasználás során vizsgálni kívánt folyamattól függően a gamma sugárzókat részesítik előnyben, egyes esetekben kifejezetten a nagyenergiájúakat (sugársterilizálás)[22].

3) Dozimetriát

Minden esetben fontos figyelembe venni a kezelő személyzetet érő sugárzást. A radioizotópok kiválasztásánál fontos szempont, hogy a felhasználni kívánt sugárzás mellett lehetőleg ne, vagy csak kis mértékben forduljon elő egyéb, nem kívánatos sugárzás (például a képalkotásban, vagy a terápiában részt nem vevő nagy energiájú gamma fotonok orvosi alkalmazás esetén)[22].

1.3.1 Gáz target

A gáz céltárgyakat általánosan használják a betegvizsgálatokhoz és a kutatásokhoz történő izotópelőállításoknál. Amint nevében is benne van a részecskegyorsítóból származó nyalábot valamilyen gáz halmazállapotú anyagba vezetik. A céltárgykamra 3 fő részből áll[24]: 1) céltárgykamra test, gáztartó, amit kívülről külső gázpalackból töltünk megfelelő nyomásra. Elég erősnek kell lennie, ellen kell állnia a benne fellépő nagy nyomásnak, kémiailag inertnek kell lennie és jó hővezetőképességgel kell rendelkeznie. Általában alumíniumból, nikkelből, nióbiumból, tantálból

vagy ezüstből készülnek. A folyadék céltárgykamrákra is ez jellemző. 2) kollimátor amely a nyílásán áthaladó nyalábot a gáztargethez megfelelő méretűre "vágja" 3) fólia ablak, ebből egy található a ciklotron felőli oldalon, elválasztva a ciklotronban uralkodó nagy vákuumot a kamrától, míg egy másik a kamrát zárja le. A fóliáknak speciális anyagból kell lenni, hogy elviseljék a besugárzás során keletkező hőt, a gáztargetben a disszipált hő hatására megnövekvő nyomást, illetve számolnunk kell a nyaláb energia veszteségével amikor áthalad rajta. Általában ezüst, alumínium, nióbium, titán vagy Havar© fóliát alkalmaznak. A Havar© fóliát használják a leggyakrabban, mert elég strapabíró magas hőmérsékleten is. Tipikus összetétele: Co (42%), Cr (19,5%), Ni (12,7), W (2,7%), Mo (2,2%), Mn (1,6%), C (0,2%) valamennyi vassal kiegyensúlyozva[25].

A gázkamrát és kollimátort általában keringtetett vízzel hűtjük, míg a nyaláb belépésénél lévő fóliát hélium gázzal. Az előállított radioizotópot gázárammal lehet kihozni a besugárzási helyről egyenesen a szintézis panelra. A gáztageteket az orvosi gyakorlatban rutinszerűen használják ¹¹C [¹⁴N]N₂(p,a)¹¹CO₂, esetenként ¹⁸F ([¹⁸O]O₂(p,n)¹⁸F₂) előállítására.

1.3.2 Folyadék target

A folyadék target a korábban említett gáz targethez nagyon hasonló, a gázkamra helyén folyadék kamrával. Ebben az esetben is lehetőségünk van a kamrát távolról könnyen feltölteni és a felhasználás helyére szállítani a besugárzott targetanyagot. Leggyakrabban ¹⁸F ([¹⁸O]H₂O(p,n)¹⁸F⁻) és ¹⁵O ([¹⁶O]H₂O(p,a)¹³NH₃) előállításra használják az orvosi gyakorlatban rutinszerűen[24].

1.3.3 Szilárd target

A szilárd céltárgy használható ciklotronon belüli, úgynevezett belső besugárzásokhoz, vagy kihozott nyaláb esetén külső besugárzáshoz is[26]. A céltárgyat valamilyen hordozóra (hátlapra) rögzítve sugározzák be. A különböző céltárgyak készítésre néhány példa lentebb olvasható. A hátlap megválasztásakor figyelembe kell venni, hogy a besugárzást követő kémiai feldolgozással kompatibilis legyen vagy a céltárgy könnyen eltávolítható legyen a hátlap anyagától. A rendszer a korábban említett rendszerekhez hasonló, a folyadék vagy gáztartály helyén a hátlapra rögzített céltárggyal. A hátlapot hátulról keringtetett vízzel, elölről héliummal szokták hűteni. A célanyagnak nagy stabilitással, magas olvadásponttal kell rendelkeznie. Rossz hővezető képességű anyagok esetén (TeO₂) a céltárgyat nem merőlegesen helyezik a nyaláb útjába, hanem valamilyen szögben, ezzel növelve a besugárzási vastagságot, ugyanakkor a biztosítva megfelelő hőelvezetést. Egyes esetekben lehetőség van olvadékok besugárzására is. A besugárzott céltárgy kihozatala lehetséges csőposta segítségével viszont a legtöbb esetben a kémiai elválasztás előtt manipulátorral szükséges szétszedni a kémiai feldolgozás előtt. A nyalábot forgatják és defókuszálják annak érdekében, hogy ne keletkezzenek úgynevezett "hot-spot"-ok, ahol a céltárgy anyag károsodhat.

1.4 Szilárdcéltárgy készítési eljárások

A besugárzáshoz szükséges szilárd céltárgyakat sokféleképpen lehet előállítani. Használhatunk tiszta fém korongot, fóliát vagy fémötvözeteket a kívánt cél elérése érekében. A legtöbb esetben a céltárgy nem tömör fém,

12

hanem por vagy oldat formájában áll rendelkezésre és azt kell olyan állapotba hozni, hogy felhasználható legyen ciklotronban történő besugárzásokhoz. Néhány általam is használt módszert leírása kerül ismertetésre az alábbiakban[27]:

1.4.1 Préselés

A legegyszerűbb és leggyorsabb módszer mikor megfelelő méretű prés szerszám segítségével a mintát közvetlenül a hátlapba vagy tablettává préseljük nyomás alkalmazásával. A folyamat során figyelembe kell venni a prés szerszám anyagát, ami beszennyezheti a mintánkat. Α nagytisztaságú céltárgyakhoz nagykeménységű wolfram vagy titán prés szerszámot kell használni. Az elkészítés során anyagveszteséggel kell számolnunk a prés felületére tapadás miatt. Minden anyag esetén más-más kiindulási mintamennyiséggel kell számolnunk és bizonyos anyagok esetén nem használható, mert nem tapad össze a tabletta. Ilyenkor adalékokkal próbálkozhatunk, aminél figyelembe kell venni, hogy a besugárzás során ne keletkezzenek zavaró szennyeződések. Radioizotóp előállításhoz megfelelő néhány 100 µm-estől mm-es vastagságú tabletták készíthetőek, amelyek 50 mg-tól több g-os mennyiségűek lehetnek. Különálló tabletta használata esetén a kémiai feldolgozás könnyebb, mint más módszereknél (elektrolízis, szedimentáció) és a hátlap is újból felhasználható.

1.4.2 Szedimentáció

Könnyen kivitelezhető eljárás, jól alkalmazható különböző sók felhasználásával. Vékonyabb céltárgyak készíthetőek vele, mint az előbb

13

említett préseléssel, akár néhány 10 mikronos vastagságúak. A módszer során a felhasználni kívánt sót diszpergáljuk egy jól párolgó oldószerben (kloroform, éter), amely nem oldja az anyagunkat és a felülethez tapadás érdekében ragasztószert ("evopreme glue") oldunk fel benne. Az így elkészült szuszpenziót megfelelően kialakított, a hátlappal ellátott mélyedésekbe adagoljuk, majd telített oldószer térben megvárjuk míg a só lassan leülepszik és az oldószer teljesen elpárolog. Sok esetben nehéz egyenletes rétegeket kialakítani, illetve a megfelelő párosításokat (oldószer-minta-hátlap) megtalálni. A módszerhez kisebb mennyiségű anyag elegendő, mint a préselésnél, viszont a bekevert elegyből a kiindulási sót nehéz tisztán visszanyerni.

1.4.3 Párologtatás

Könnyen kivitelezhető eljárás, csak fémeknél használható és nem minden fém alkalmas rá. A felhasználni kívánt fémet nagy vákuumban megfelelő hőmérsékletre hevítve elkezd párologni és a felette elhelyezett hidegebb hátlapon csapódik le. A hevítésre leggyakrabban tantálból készült csónakot használnak. Egészen vékony, néhány mikronostól néhány 100 mikronos vastagságú céltárgyak készíthetőek. Egyenletes, mechanikailag stabil rétegek és a hevítés idejével kontrollálva különböző vastagságok érhetőek el. Kiindulási anyag igénye nagy, mert rendkívül alacsony a hozama, gyakran az 1%-ot sem éri el. A párolgási út során kicsapódik a minta műszerben, ezzel a veszteséggel számolni kell. Használatához speciális felszerelés szükséges.

1.4.4 Elektrolízis

Könnyen kivitelezhető, alacsony költségű eljárás. Ahol a katód felületére elektrokémiai úton választjuk le a kívánt anyagot. Jól szabályozható néhány 10 mikronos vastagságú céltárgyak állíthatóak elő. A korábban említett 3 módszerhez képest a legkevesebb anyaggal kivitelezhető eljárás. Nem igényel speciális felszerelést. A használatához szükséges elektrolit oldat összetétel széles kőrűen változtatható. Sokszor körülményes az egyenletes, vastag, mechanikailag stabil réteg előállítása.

1.4.5 Ritkaföldfémek elektrolízise

Vékony tiszta gadolínium fém és ötvözet rétegek (kobalttal és vassal) előállítása az iparban gyakran használt. Ehhez sóolvadékból 700 °C körüli hőmérsékleten végzik ez elektrolízist[28][29]. Néhány esetben folyadék elektrolízis is használnak ahol a ritka földfém kationos formában található meg[30]. A fent említett módszerekkel nagyon vékony tiszta gadolínium vagy fémötvözet rétegek állíthatóak elő, maximum pár 10 nm vastagságig. Ez a rétegvastagság nem elegendő sem a spektrometriai sem a nukleáris adat mérésekhez az izotóptermeléseknél. A szakirodalomban többféle módszer található sóolvadékból, szerves elektrolitból és vizes közegből végzett elektrolízisre vas és alumínium hátlapra. Különböző elektrolit oldat összetétel, az idő, a feszültség és a katód anyag hatását figyelték meg az elektrolízisre[29]–[32]. Egyszerű elektrolitikus cellában 0,5 mg/cm2 vastagságot lehet elérni, mechanikailag is elfogadható rétegek előállítása mellett. Célom, hogy 2-5 mm vastag, mechanikailag is stabil gadolínium réteget hozzak létre. Gd esetén ennél vastagabb céltárgy nem készíthető elektrolízissel a nem elégséges mechanikai stabilitás miatt. Ugyanakkor a néhány µm-es céltárgyak kiválóan alkalmasak hatáskeresztmetszet mérésekhez, ami szükséges az orvosilag is fontos ¹⁵²Tb és ¹⁵⁵Tb radioizotópok optimális körülmények között történő előállításának kidolgozásához.

1.5 Radioizotóp generátorok

Radioizotóp generátoroknak nevezzük, ha az anyaelem bomlásából származó lányelemet használjuk fel. Az anyaelemet általában valamilyen formában rögzítjük egy oszlopra és specifikus eluens segítségével eluálják a felhasználni kívánt radioizotópot. Négyféle radioaktív bomlási séma létezik anya és lány elem között: 1) az anyaelem felezési ideje rövidebb, mint a lány elemé, 2) az anyaelem és a lányelem felezési ideje összemérhető 3) és 4) az anyaelem felezési ideje hosszabb vagy jelentősen hosszabb, mint a lányelemé. Az izotóp generátorok előállításához legalkalmasabb, ha 3. vagy a 4. csoport tartozó párokat használunk. Az orvosi gyakorlatban főleg ⁹⁹Mo/^{99m}Tc generátorokat használnak rutinszerűen[33].

1.6 Terbium radioizotópok

A terbium radioizotópok különlegessége, hogy megtalálható közöttük terápiára és diagnosztikára is alkalmas bomlással rendelkezők[9]. Felezési idejük is ideális az orvosi felhasználásra. A négy orvosilag fontos radioizotóp tulajdonságai az 1. táblázatban láthatóak:

	Felezési idő	Bomlás	Energia	Felhasználás
		típus		
		(elágazás)		
¹⁴⁹ Tb	4,12 óra	α (17%)	3,967 MeV	Terápia
¹⁵² <i>Tb</i>	17,5 óra	$\beta^{+}(17\%)$	1,080 MeV	PET
				diagnosztika
¹⁵⁵ Tb	5,32 nap	EC (100%),	86,55 keV	SPECT
		auger	(32%),	diagnosztika,
			105,3 keV	terápia
			(25%)	
¹⁶¹ Tb	6,88 nap	β- (100%)	0,154 MeV	Terápia

1. táblázat Orvosilag fontos 4 terbium radioizotóp tulahdonságai

A fenti táblázatban felsorolt terbium radioizotópok egy része ciklotronnal előállítható gadolíniumból. Az előállítási útvonalak a 2. ábrán láthatóak[34].



2. ábra terbium radioizotópok előállítása gadolíniumból ciklotronnal

A termelt terbium radioizotópokat a feldolgozás során gadolíniumtól el kell választani. Másik lehetséges előállítási útvonal a 3. ábra látható, ahol stabil terbiumból ciklotronnal történő besugárzás során radiodiszpróziumot állítunk elő. A diszprózium(III)-at a terbium(III)-tól

elválasztjuk, majd a ¹⁵⁵Dy lebomlását követően a keletkezett ¹⁵⁵Tb-ot felhasználhatjuk. A módszer során a 9,9 órás felezési idejű diszprórzium nem teszi lehetővé igazi generátor előállítását, viszont egy lehetséges radioterbium előállítási utat kínál[34].



3. ábra terbium radioiozotóp előállítása ciklotronnal terbiumból diszpróziumon keresztül

A terápiás radioterbium előállítása neutronokkal történik gadolíniumból. Az előállítás sémája a 4. ábra látható. A folyamat során nagy mennyiségű gadolíniumot kell besugározni[35].



4. ábra terápiás ¹⁶¹Tb előállítása gadolíniumból neutronokkal

1.6.1 Lantanidák elválasztása

A lantanidák kémiai tulajdonságai nagyon hasonlóak, ezért elválasztásuk nehéz. Az elválasztáshoz a szakirodalomban ioncserélő gyantákat vagy lantanidák elválasztására kifejlesztett kifejezetten а gyantát használnak[36]. A legintenzívebben tanulmányozott szomszédos három értékű lantanida elválasztás az Yb³⁺/Lu³⁺ rendszer, mivel a ¹⁷⁷Lu egy sokat tanulmányozott radioizotóp, amelyet az ideális terápiás tulajdonságai miatt használják. A módszer hatékonysága 75%. Minden lantanida párra található a szakirodalomban elválasztás, amely lehet extrakciós[37]-[40], fordított fázisú, ion-pár vagy ioncserés kromatográfia[35], [41]. Ioncserés elválasztás során erős kation cserélő oszlopokat használnak (AMINEX A6, Dowex 50W-X8).

1.7 Mangán-52

A mágneses magrezonancia képalkotás (MRI) során a jel a következő egyenlet alapján épül fel:

$$SI = N(H) \times \left[1 - e^{-\frac{TR}{T_1}}\right] \times e^{-\frac{TE}{T_2}}$$
(1)

ahol, SI a végső jel intenzitása, N(H) a térfogategységben lévő protonspinek sűrűsége, T₁ a longitudinális, T₂ a transzverzális relaxációs ideje a spineknek, TR az ismétlési idő, TE az echo késleltetési idő [42]. Paramágneses tulajdonsága révén a mangán gyorsítja a longitudinális mágnesesség visszarendeződését vagyis csökkenti a T₁ relaxációs idejét a vízben lévő protonoknak a testben. A 1. számú egyenlet alapján látható, hogy a T₁ csökkenésével nő a jel intenzitása. Ezek alapján alkalmas lehet mágneses rezonancia képalkotáshoz (MRI) kontrasztanyagnak[43]. A

kétértékű mangán sokféle enzim működéséhez szükséges, a szervezet számára nélkülözhetetlen elem, lehetőség vele van idegi aktivitás, illetve funkcionális béta-sejttömeg non-invazív mérésére.

Az esszenciális elemek közül a mangán a legkevésbé mérgező, azonban az injektálható mennyisége korlátozott, amit figyelembe kell venni az MRI kontrasztanyagként felhasználása során[43]–[45]. A radioaktív mangánnal végzett vizsgálatoknál nem áll fenn ez a probléma, mivel ebben az esetben csupán nmol/dm³-os mennyiségben szükséges alkalmazni. Jelenleg a ⁶⁴Cu és a ⁸⁹Zr legtöbbet tesztelt radioaktív fémek a fehérjék jelölésére. Ezek kiváltására jó lehet a mangán(II), mivel a réz(II)-höz hasonlóan jól használható, vizes kémiája van[46]. A mangán-52 felezési ideje 5,6 nap, hasonló, mint a ⁸⁹Zr-nak ($t_{1/2}=3.3$ nap) és sokkal hosszabb, mint a ⁶⁴Cu-nek (t_{1/2}= 12,7 óra). Ez lehetővé teszi hosszabb vizsgálatok elvégzését, akár antitestekkel történő párosítását. 29,4%-ban pozitron bomló radioizotóp, ami magasabb arány, mint a ⁶⁴Cu (17,6%) vagy a ⁸⁹Zr (22,7%)[47]. Átlagos béta energiája (241,6 keV) alacsonyabb, mint a ¹¹C-é (960 keV), ⁸⁹Zr (396 keV), ¹⁸F (635 keV) vagy a ⁶⁸Ga (1899 keV)[48]. Ez jó felbontást tesz lehetővé kisállat vizsgálatoknál. Hátránya a bomlása során keletkező három nagy energiájú gamma foton (744, 936, 1434 keV), amelyek az alkalmazása során többlet dózist okoznak.

A mangán-52 előállítása króm targetből történik. A besugárzást követően a keletkezett radiomangánt el kell választani a krómtól, erre több módszer áll rendelkezésre. Lehetőség van folyadék extrakciós[49] módszerrel elválasztani, de az irodalomban beszámolnak a Mn(II) és a Cr(VI)[50] és Mn(II) és a Cr(III)[51] elválasztásáról kation cserélő gyantán vizes közegből. Lehetőség van anioncserélő gyantán tömény, 12 mol/dm³-es sósavas közeben elválasztani a Mn(II)-t és a Cr(III)-at[47], [52]–[55]. A folyamat során a króm(III) és a mangán(II) különböző koncentrációjú sósav eluensben eltérően kötődik az anion cserélő oszlophoz (5. ábra).



5. ábra a különböző elemek kötödésé az anion cserélő gyantához HCl közegben[56]

1.8 Növények tápanyag igénye

A 2018/19 -es évben világszerte körülbelül 1 milliárd tonna kukoricát, 758 millió tonna búzát, 488 millió tonna rizst, 144 millió tonna árpát, 23 millió tonna zabot és 12 millió tonna rozsot termeltek[57]. A megtermelt gabona mennyisége alapján a legfontosabb a kukorica. A kukoricát széles körben használják világszerte, például: állati takarmányozásra, emberi táplálékra és ipari célokra. Az ellenállóbb kukoricanövények folyamatos fejlesztése rendkívül fontos. A terméshozamot nagyban befolyásolják a betegségek (kukorica rozsda, kukoricalevélfolt, hamuszürke rothadás stb.[58]) és az időjárási viszonyok[59]. A káros hatások csökkentésére kifejlesztett génszelektált növényeket általában kísérleti mezőgazdasági területeken tesztelik (fenotipizálják), ami időigényes folyamat.

A szelektálás történhet terméshozam mennyiségének mérésével vagy a növények számára esszenciális elemek felvételében bekövetkezett változások mérésével. A növények számára legfontosabb három fő makrómennyiségben szükséges tápanyag a nitrogén [60], a foszfor és a kálium, amelyet hagyományosan szervetlen műtrágyák biztosítanak és elengedhetetlenek a növények számára. A tápanyagokat más termékek és eljárások, például szerves trágyák, növényi maradványok és biológiai nitrogénmegkötés is biztosíthatják[11], [61].

A nitrogén a növények növekedéséhez fontos és az egyik legelterjedtebb elem a föld légkörében és felszínén. A növények által hasznosítható nitrogén szervetlen ammónium (NH_4^+) és nitrát (NO_3^-) formában van jelen. A foszfor fontos a növények szaporodásához. A növények számára egyik fő forrása a talaj szerves anyagából származik[62].

A növény növekedéséhez rendelkezésre álló kálium pozitív töltésű ion, amely lazán vonzódik a talajrészecskék negatív töltésű felületeihez[63].

A kalcium, a magnézium és a kén másodlagos makrótápanyagok kisebb mennyiségben van szükség rájuk. A növekedéshez elengedhetetlenek[64]. A bór, a cink, a mangán [12], [65]–[69], a vas, a réz, a molibdén, a nikkel és a klór a növények növekedéséhez szükséges mikroelemek, amelyek a növények tápanyagának csak kis hányadát teszik ki, azonban hiányuk a növekedésben és a terméshozamban is kimutatható[70].

1.8.1 Polietilén-glikol (PEG) hatása a tápanyag felvételre

Az aszály jelentős abiotikus stressz, amely világszerte korlátozza a növények elterjedését és termelőképességét, hatalmas termésveszteséget eredményezve. A világ teljes területének közel egyharmada mondható száraznak vagy félszáraznak. Számolnunk kell azzal, hogy az emberi tevékenységek (erdőírtás, urbanizáció) és a globális felmelegedés következtében aszályos időszakok egyre gyakrabban fordulhatnak elő. Ezért is növekszik az igény a szárazságnak jobban ellenálló, kevesebb vizet igénylő fajták fejlesztésére. Ezen fajták kifejlesztéséhez szükség van a szárazságstressz tolerancia fiziológiai és molekuláris mechanizmusának ismeretére.

A növényeket tápanyaggal és vízzel a gyökerek látják el. A vízfelvétel a talajvíz-gyökér potenciál különbségek alapján működik. A vízfelvételhez a növények gyökérében lévő potenciálnak kisebbnek kell lenni, mint az azt körülvevő folyadékénak. A gyökerek kulcsfontosságúak a szárazsággal szembeni érzékenységre és a növény arra adott válaszára. A szárazság imitálása a vízpotenciál csökkentésével érhető el. A vízpotenciál (Ψ_{viz}) értéke az alábbi 2. számú egyenlettel adható meg:

$$\Psi_{viz} = \Psi_o + \Psi_p + \Psi_m + \Psi_g \tag{2}$$

ahol Ψ_o – ozmotikus potenciál, értéke az oldott anyagok koncentrációjától függ a 3. számú egyenlet alapján:

$$\Psi_o = -\mathbf{R} \times \mathbf{T} \times c_{oa} \tag{3}$$

ahol R – egyetemes gázállandó, T – hőmérséklet Kelvinben (K) megadva, c_{oa} – oldott anyagok koncentrációja

 Ψ_p – nyomás potenciál, a hidrosztatikai nyomásból származtatható, a gyökér szintjén elhanyagolható

 Ψ_m – mátrix potenciál, a talaj vízpotenciál értéke teljes mértékben azonosítható ezzel az értékkel, növényeken belül elhanyagolható

 Ψ_g – gravitációs potenciál, csak magas növények, fák esetében van jelentősége, értéke 10 méterenként +0,1 MPa.

Kisebb növények, palánták esetében a nyomás (Ψ_p) és a gravitációs (Ψ_g) potenciál értékek elhanyagolhatóak. Hidrofonikus rendszerek (szilárd talaj nélkül, tápoldatban történő nevelés) esetén a mátrix potenciál (Ψ_m) értéke is elhanyagolható[71]–[73]. Ezek alapján a kísérleteim során a

vízpotenciál értéke az oldott anyagok mennyiségétől függ, minél több nagyobb az oldott anyagok mennyisége annál negatívabb számot kapunk. Erre a célra kiválóan alkalmas a PEG [74], amely egy nem toxikus, nem metabolizálható és nem felszívódó anyag, amit széles körben használnak ozmotikus stressz kiváltására. A szakirodalom alapján a PEG oldat tökéletesen alkalmas aszály szimulálására a növényeknél a szárazságtűrő képesség tesztelése céljából[75], [76].

1.9 Fenotipizálás

A fenotipizálás kifejezést 1960-as évektől használják, a növényeket írják le anatómiai, biokémiai, fiziológiai tulajdonságaik és látható felépítésük (ontogenetikai tulajdonságuk) alapján. A terület előrehaladásához hozzájárult az analitikai kémiai módszerek fejlődése, melyek lehetővé tették a különböző tulajdonságok kvantitatív vizsgálati eredményeinek leképezését, folyamatok, például fehérjék variabilitásának, anyagcsere utaknak leírására. a А növény-környezet kölcsönhatások tanulmányozásához а roncsolásmentes, képelemzéseken alapuló növények módszerek lehetővé teszik a tulajdonságainak nagy áteresztőképességű vizsgálatát[77]. Ezek a módszerek már nem csak az alapkutatásokban hasznosak, hanem folyamatosan fejlődnek és a növénytermesztésben és a precíziós mezőgazdaságban is megállják a helyüket. Lehetőség nyílik az egyes különbségek (például növekedés beli) kimutatására, akár néhány napon belül a digitális képalkotási eljárásokkal. A kezdeti egynövényes kísérletek után a módszer már egészen a robusztus "szántóföldi" technikákig is használható[78]. Általános, hogy több száz vagy ezer mérés szükséges az egyedek besorolásához. Többféle képalapú módszer alkalmazható a multispektrális képelemzéstől a hőkamerás

feltérképezésen (termográfián) át a növekedésmérésig. A vizsgálatok gyakran csak egy adott folyamatra, szervre koncentrálnak, például egy adott elem felvétele; levelek vagy gyökér növekedése. A 3D-s képalkotások fejlődése a funkcionális leképezést tette lehetővé, mint például a fotoszintézis, a növényi párologtatás vagy a transzport folyamatok leképezése. Napjainkban a non-invazív eljárásokat használó fenotipizálás nagy fejlődést ért el[79], [80]. Ezek közé tartoznak a tomográfiás (mágneses rezonancia képalkotás (MRI)[81], pozitronemissziós tomográfia (PET) és számítógépes tomográfia (CT), vagy akár ezek kombinációja) mérésekkel elvégzett vizsgálatok[82]. A terület további fejlődéshez előnyős lehet újabb technikák, tudományágak, mint például a robotika, távvezérlés, mesterséges intelligencia bevonása. Az új tudományterületek alkalmazása hasznos a növénynemesítők számára, legyen szó só tűrés vagy a szárazság tűrés meghatározásáról kukoricában vagy árpában[83].

1.10 Növények vizsgálata

A növény állapota nyomon követhető a tápanyagok felvételén keresztül, ha megfigyeljük a szükséges mikro- és makroelemek felvételét és szállítását a növényekben[84]. Tizenhárom elem elengedhetetlen a kukorica növekedéséhez[64]. Ezek egyike, a mangán csak mikrotápanyag, de elengedhetetlen az enzimek működéséhez, a fotoszintetikus folyamatban víz felhasítását végzi, amely folyamat hozzájárul a későbbi szénhidrát szintéziséhez; valamint a nitrogén-, vas- és foszfor anyagcserében[69][85]. Ezen elemek felvételének és szállításának mennyisége atomi abszorpciós spektrofotometriával vagy ICP-MS-vel vizsgálható[86] a növényekből gyűjtött darabokból. Az első non-invazív

25
mérések során detektorpárokat használva detektálták a pozitron sugárzó radioizotópokat[87], [88].

Kutatásom célja az volt, hogy tanulmányozzam a felvételi és szállítási folyamatot non-invazív módon radioizotópokkal, PET alkalmazásával, amely térbeli képeket alkot a növényekről. Ez a módszer egyidejűleg észleli a pozitronokból származó 511 keV energiájú két gamma fotont. A vizsgált izotóp felvétele folyamatosan ellenőrizhető a növények megsemmisítése nélkül. A PET módszer megbízhatóságát az érzékeny gamma spektrometriával ellenőrzöm. Ebben az esetben azonban már invazív az eljárás mivel a növény különböző részeiben lévő izotóp mennyiségének méréséhez azt szakaszokra kell bontani, és meg kell határozni a darabok bomláskorrigált aktivitását. Az eredményekből izotópeloszlás, kiszámítható az és összehasonlítható а PET eredményekkel. Kísérleteimben a fenti módszerek kombinációjával vizsgáltam kétféle kukorica palántájának mangán(II)-felvételét normál és aszályos körülmények között. A növények vízhiányát PEG alkalmazásával indukáltam. A radioizotóp nyomjelző mangán-52 volt, amely ciklotron által termelt radioizotóp, pozitronnal és jól mérhető gamma-kibocsátással. A felezési ideje 5,6 nap, amely alkalmas a növények izotópfelvételének hosszú órákon keresztül történő monitorozására PET kameránkkal és a gamma spektrometriás mérésekre is. A módszeremmel különböző hibridek megkülönböztetését tudom elvégezni, az adott körülmények között jobban teljesítő, ellenálóbb fajtát ki tudom választani.

1.11 Gamma spektrometria

A gamma spektrometria egy multielemes módszer, amivel egyszerre több radionuklid minőségi és mennyiségi meghatározását elvégezhetjük. A gamma sugárzással nem rendelkező, tiszta alfa és béta sugárzó radioizotópok nem vizsgálhatóak a módszerrel.

A gamma sugárzás az atommagban keletkező elektromágneses sugárzás, melynek energiája 50 és 3000 keV közötti. A gamma fotonok tömeggel és töltéssel nem rendelkeznek, kölcsönhatásuk az anyaggal történhet szóródással vagy abszorpcióval. A három fő folyamat a párképződés, amikor a gamma foton energiája nagyobb, mint a 1,022 MeV, akkor az atommag coulomb-terében elektron-pozitron keletkezik belőle. A compton szóródás, amikor a gamma foton a héjelektronoknak ütközve energiájának egy részét átadja. Fotoeffektus, mely folyamat során a gamma foton a héjelektronnak ütközve teljes energiáját átadja. Mindhárom folyamat keletkezhet akkor, amikor a gamma foton kölcsönhatásba lép a detektor anyagával. A gamma spektrumban a minőségi és mennyiségi azonosításra a fotoeffektusból származó csúcs használható, ezt megelőzi a compton szóródásból származó compton plató és compton él, amelyek egy szélesebb folytonos sávot tesznek ki.

A detektorokban jelenleg leggyakrabban félvezető kristállyal (Ge, SiLi, GeLi) felszerelt rendszereket használnak, amelyeknek jobb az energia feloldása, mint a sókristállyal (NaI) rendelkezőknek. Ezek közül is a nagytisztaságú germániumot (HPGe) tartalmazó műszerek a legelterjedtebbek, melyek nem igényelnek állandó folyékony nitrogénes hűtést. A gamma spektrométer további részei a nagyfeszültségű tápegység, előerősítő, erősítő, multi csatornás analizátor (MCA), analóg-digitális

27

átalakító (ADC), ólom árnyékolás, folyékony nitrogén tartály a hűtéshez és a spektrumok megjelenítéséhez szükséges számítógépes szoftver. A pontos mérésekhez energia és hatásfok kalibráció szükséges. Szinte bármilyen mátrix elemezhető a technikával a legtöbb esetben roncsolásmentesen[89], [90].

A módszer előnyei

- A legtöbb esetben roncsolás mentes
- Multielemes
- Jó energia felbontás (HPGe esetén 1-2 keV)
- Alacsony kimutatási határ

Hátrányok

- Csak gamma sugárzással rendelkező radioizotópok mérhetőek
- Nagy és nehéz árnyékolást igényel
- Folyékony nitrogén szükséges az üzemeltetéshez

Kísérleteimhez Canberra típusú HPGe detektorokat használtam, 4000 csatornás analizátorral, Genuie és Nucleus szoftverekkel.

1.12 MiniPET kamera

A pozitron emissziós tomográfia egy olyan nukleáris képalkotó eljárás mely során pozitron bomló radioizotópokat jeleníthetünk meg 3 dimenzióban. A módszer alapja a pozitronok annihilációja során keletkező 2 db gamma foton egyidejű detektálása. A fotonok 180 fokos szögben hagyják el az annihiláció helyét, csak azt tekintjük jelnek amikor a gyűrűdetektor két szemközti pontja egyszerre, egy szűk időablakon belül (2-10 ns), regisztrálja a beérkező fotont[91]. Ezáltal sokkal tisztább képet kaphatunk, mint az egyszerű planáris gamma kamerával. A módszer során

a két jel beérkezésének ideje közötti kis mértékű eltérések segítségével a kiindulás pontot finomabban tudjuk elhelyezni a térben.

A gyűrűdetektorral felszerelt PET kamerákat leggyakrabban az orvosi gyakorlatban használják fel. A radioizotópokat különböző molekulákhoz kötve funkcionális vizsgálatokat végezhetünk. Ezek a készítmények a radiofarmakonok, amelyek fő részei: biomolekula és a radioizotóp. A biomolekula juttatja el az aktivitást arra a helyre, amit vizsgálni akarunk az élő szervezetben. A radioizotópot köthetjük a biomolekulához kovalens kötéssel vagy bifunkcionális kelátorok felhasználásával. A PET kamera az aktivitás halmozódásokat képes megjeleníteni. Ennek alapja a kóros elváltozásoknál tapasztalható túlműködés vagy daganatos sejtek felületén megjelenő receptorok nagy száma. Ezáltal olyan biokémiai változásokat észlelhetünk melyek jelezhetik egy betegség kezdetét, még mielőtt más anatómiai képalkotó eljárásokkal lehetőség lenne. A technikát egyre szélesebb körben használják, illetve kombinálják más módszerekkel, mint a CT vagy az MRI, amivel anatómiai képet tudnak párosítani a funkcionális képhez[92].

Korábban a vizsgálatokhoz használt radiofarmakonokat a kamera közelében kellett előállítani, ma már a hosszabb felezési idejű radioizotópot (pl. ¹⁸F 109 perc) tartalmazókat már szállítják a felhasználás helyére.

A kisállat PET vagy miniPET hasonló elven működik az előbb leírtakhoz, viszont a mérete sokkal kisebb, mint a humán PET készüléké (6. ábra).

29



6. ábra plüss nyúl a miniPET kamera alatt (balra), ugyanaz a nyúl "humán", emberi PET kamera alatt (jobbra)

A detektorgyűrű átmérője jellemzően 20 cm szokott lenni a miniPET esetében, míg a humán PET-nél legalább 60 cm. A detektorgyűrű detektor blokkokból áll és minden blokk számos kristályt tartalmaz, amelyek a gamma fotonra fényfelvillanással reagálnak. A miniPET esetében jellemzően kisebb 1-3mm széles kristályokat használnak, amelyek a kisebb gyűrűátmérővel együtt jobb felbontás tesznek lehetővé. Ez azért fontos, mert a vizsgálni kívánt állatok leggyakrabban egerek vagy patkányok. A humán PET 4-5mm-es felbontással rendelkezik, míg a miniPET 1-3mm-el a kristály mérettől függően[93]. A jobb felbontás lehetővé teszi szélesebb körű alkalmazását, kisebb tárgyak, mint például HPLC oszlop[94] vagy katalizátorok felületének vizsgálatát[95].

A kísérletek során használt miniPET kamera az Atomkiben lett kifejlesztve[96]. Egy detektor gyűrűvel rendelkezik, amely 12 detektor blokkból áll (7. ábra). Mindegyik detektor blokk 1225 SiPM kristályt (1,27 x 1,27 x 12 mm) tartalmaz, 1,23mm-es elméleti maximális felbontást tesz lehetővé. Látótere 75mm átmérőjű 48mm mélységű henger.



12 detektor blokk (1225 kristály/detektor blokk)

7. ábra MiniPET-3 kamera felépítése és látóterében szemléltetett működése

2 Kísérleti körülmények és vizsgálati módszerek

2.1 Felhasznált anyagok és vegyszerek

A munkám során a következő vegyszerek használtam:

Gadolinium(III)-oxid (Alfa Aesar, Ward Hill, MA, USA 99,99%), terbium(III)-oxid (Sigma-Aldrich 99.99%), elemi króm por (CNPC-ECR300, 99,95% 48 µm (300 mesh)), ¹⁸O dúsított víz ([¹⁸O]H₂O) (≥98% ¹⁸O, Taiyo Nippon Sanso Corp.), sósav (WVR, Analar Normapur Reag. Ph. Eur.), sósav (VWR trace analisys, ARISTAR), etanol (VWR AnalaR Normapur Ph. Eur.), BioRad 50W-X8 (H⁺ forma 37-74 µm (200-400 mesh)), BioRad AG 1-X8 (Cl⁻ forma 37-74 µm (200-400 mesh)), ammónium-klorid (Reanal a.r.), 2-hidroxi-2-metilpropánsav (α -HIBA) (99% Aldrich), ammónium-karbonát (Reanal a.r.), hidrogén-peroxid, kalcium-nitrát (Reanal a.r.), kálium-szulfát (Reanal a.r.), magnéziumszulfát (Reanal a.r.), kálium-dihifrogén-foszfát (Reanal a.r.), kálium-klorid (Reanal a.r.), mangán(II)-szulfát (Reanal a.r.), cink-szulfát (Reanal a.r.), réz-szulfát (Reanal a.r.), bórsav (VWR a.r.), dinátrium-etiléndiamintetraecetsav (Na₂EDTA) puriss), (Molar vasetiléndiamintetraecetsav (VWR), kálium-karbonát (Reanal a.r.), polietilénglikol (PEG 6000) (VWR International BVBA).

A munkám során használt berendezések:

Ciklotron (MGC-20), tápegység (RFT 3208, 300 V, 0,5 A), HPLC pumpa (GILSON 305), BioRad tölthető oszlop (115x15mm), GE tölthető oszlop (belső méret: 250x4,6mm), mágneseskeverős melegítő (Velp Scientific AREX), gamma-számláló (Bioscan), tára mérleg (Sartorius cp622), analitikai mérleg (Sartorius), gamma spektrométer (Canberra HPGe),

32

növénynevelő lámpa (Led 60W), miniPET kamera (MiniPET-3), arduino nano, hőmérséklet szenzor (DHT22), hőmérséklet és páratartalom logger (Testo Saveris 2), digitális pH mérő (Testo 206), dóziskalibrátor (Atomlab 100).

A munkám során használt kukorica típusok: 'P9903' (1-es típus), 'Armagnac' (2-es típus).

2.2 Besugárzások

A céltárgyakat az Atommagkutató Intézetben (Atomki) található MGC-20 ciklotronnal sugároztam be. A besugárzás paraméterei Gd és Tb céltárgy esetén: 15 MeV proton 50 nA 3 órán keresztül. Ezen az energián a hatáskeresztmetszet mérések alapján ¹⁵⁹Dy [¹⁵⁹Tb(p,n)¹⁵⁹Dy][97], ¹⁵⁶Tb [¹⁵⁶Gd(p.n)¹⁵⁶Tb][97] és ¹⁵⁹Gd [¹⁶⁰Gd(p,d)¹⁵⁹Gd][98] radioizotópok keletkeznek. Az elválasztási kísérletekhez 175-350 mg Gd₂O₃ és Tb₂O₃ porból préselt tablettákat, míg hatáskeresztmetszet mérésekhez elektrolízált Gd céltárgyakat készítettem.

A fenti besugárzási adatok Cr céltárgy esetén: 18 MeV proton 10 μ A 4-10 óra (a szükséges aktivitás mértékétől függően). ⁵²Mn [⁵²Cr(p,n)⁵²Mn][51], [99], ⁵¹Cr [⁵²Cr(p,pn)⁵¹Cr][51] felhasznált radioizotópok keletkeznek. Minden besugárzáshoz 200 mg 99,9% tisztaságú 48 μ m finomságú krómporból préselt tablettákat használtam.

¹⁸O céltárgy esetében a besugárzási adatok: 14,5MeV proton 6 μA 1-2 óra óra (a szükséges aktivitás mértékétől függően). ¹⁸F [¹⁸O(p,n)¹⁸F][100] radioizotóp keletkezik. A besugárzásokhoz ¹⁸O dúsított vizet használtam.

33

2.3 Gd céltárgy készítése

Mivel a dúsított lantanidák ára is magas, a belőlük készült céltárgyak előállítása során fontos, hogy relatíve kis anyagmennyiség használatával készítsünk megfelelően vastag rétegeket. A tapasztalataim alapján erre az elektrolízis és a szedimentációs módszerek a legmegfelelőbbek. Az elektrolízisre esett a választásom, mert egyenletesebb felületet lehet vele elérni. Az elektrolízáló cella összeállításánál arra törekedtem, hogy a lehető legkisebb elektrolit mennyiség felhasználásával működjön. A minták hátlapjának Al-ot választottam, amiből a protonnal végzett besugárzások során, a vassal ellentétben, nem keletkeznek zavaró radioizotópok (^{55,56,57,58}Co, ⁵⁴Mn, stb[101]). Az Al hátlapom egyben katódként is szolgált.

A folyamat során használt cella felépítése és paraméterei az alábbi ábrán láthatóak, 8. ábra. A kísérletek során kis mennyiségű, 2,5 ml elektrolit oldattal dolgoztam. Az elektrolízis során ügyeltem arra, hogy az anód a folyadékban legyen, mivel keletkező H₂ buborékok miatt az elektrolit oldat térfogata kissé csökkent, folyamatosan pótoltam a hiányzó folyadékot. Az anód és a katód közötti távolság mindig 14 mm volt.



8. ábra Az elektrolízáló cella sematikus rajza. a) 25mm hosszú kvarccső, 12mm-es belső átmérővel, b) teflon tartók, c) 10mm átmérőjű Pt gyűrű, mint anód, d) Al fólia (350µm vastag, 16mm átmérőjű, egyben a katód, e) alumínium támasztó, f) csavarok a szerkezet összeszorításához. Az üvegcső és a katód között szilikon tömítést alkalmaztam.

A lehető legjobb minőség érdekében az elektrolitban a disszociált proton mennyiségét próbáltam minimalizálni etanollal, hogy meggátoljam az intenzív H₂ gáz képződést. Előzetes kísérletek alapján végül 3 mg/ml Gd³⁺ koncentráció mellett döntöttem. Az elektrolit oldathoz 69,4 mg analitikai minőségű Gd₂O₃ (Alfa Aesar, Ward Hill, MA, USA) port oldottam fel 0,1 mol/dm³ HCl-ban, majd szárazra pároltam. Ezt még kétszer megismételtem, hogy biztosan a teljes gadolínium tartalom klorid formában legyen. A mintát 0,5 ml 0,01 mol/dm³ HCl oldatban oldottam fel és 20 ml-re egészítettem ki abszolút etanollal. Az így készült elektrolit oldatot használtam.

A szakirodalomi ajánlások alapján az elektrolízishez 300 V feszültségű 0,5 A áramerősségű tápegységet (RFT 3208) használtam[31]. A legegyenletesebb elektrolízált felület elérése érdekében több áramerősség értéket kipróbáltam (15-40 mA). A folyamat 50-55 percet vett igénybe mintánként. A minták mechanikai stabilitását ejtési tesztekkel és hevítéssel végeztem, majd protonokkal sugároztam be őket. Megmértem a besugárzott mintákat gamma spektrométerrel, kémiai elválasztás nélkül, a keletkezett radioizotópok azonosítása érdekében. A ¹⁵⁵Tb 105,3 keV és a ¹⁵⁶Tb 534,3 keV energiájú gamma vonalát kerestem az azonosításhoz.

- 2.4 Elválasztási kísérletek
- 2.4.1 Tb³⁺ elválasztása Gd³⁺-tól

A dúsított izotópösszetételű kiindulási anyag esetében, ha lehet megfelelő vastagságban elektrolízálni, az elektrolízissel készített céltárgyak a legmegfelelőbbek. Gadolíniumból elektrolízissel csak néhány mikron vastagságú céltárgyat tudtam készíteni, amelyek alkalmasak voltak hatáskeresztmetszet mérésekhez. Az orvosi célú izotóp termeléshez, ahol a nagyobb aktivitások előállításához jóval vastagabb céltárgy szükséges, más módszert kellett alkalmazni. A legjobb módszer ebben az esetben a préselt tabletta besugárzása. Ehhez mintánként néhány 100 mg anyagra van szükség. hogy a tabletták kellő mechanikai stabilitással rendelkezzenek a besugárzáshoz. A szakirodalom szerint ezeket a céltárgyakat nagy méretű, gyanta tartalmú kolonnákon választották el. Új módszert fejlesztettem ki a keletkezett terbium(III) nagy mennyiségű gadolínium(III)-tól való elválasztására, az alkalmazott oszlop méretének minimalizálása mellett. Az elválasztáshoz BioRad 115x15 mm 20 ml és GE 250x4,6 mm 4 ml térfogatú oszlopokat töltöttem. A besugárzásokhoz természetes izotóp összetételű gadolínium-oxidból (Alfa Aesar, Ward Hill, MA, USA) préselt tablettát használtam, 175 és 350 mg gadolínium tartalommal. A tabletták mindkét esetben 10 mm átmérőjűek voltak, a

kisebbik tömeg esetén 0,5 mm, a nagyobb tömeg esetén 1 mm vastagsággal.

A besugárzott céltárgyakat tömény sósavban (WVR, Analar Normapur Reag. Ph. Eur.) oldottam fel, szárazra pároltam, majd ezt a folvamatot még kétszer megismételtem, hogy a teljes terbium és gadolínium tartalom TbCl₃ és GdCl₃ formában legyen. A bepárolt mintát 2 ml (a nagyobb oszlop használatakor) és 0,5ml (a kisebb oszlop használatakor) 0,05 mol/dm³ NH₄Cl (Reanal) oldattal oldottam fel az elválasztás előtt. Az elválasztáshoz minden esetben BioRad AG50W-X8 kationcserélő gyantát használtam. Eluensként különböző koncentrációjú 2-hidroxi-2metilpropánsav (α-HIBA) (Sigma-Aldrich) oldatot használtam. A szakirodalom szerint a különböző koncentrációjú α-HIBA oldatok eltérő retenciós időt eredményeznek a Gd³⁺ és a Tb³⁺ esetén[102]. 0,2 mol/dm³ α -HIBA-t használtam a Tb³⁺ és 0.5 mol/dm³ α -HIBA-t a Gd³⁺ eluálásához. Az eluens pH-ját 4,5-re állítottam be NH₄CO₃ (Reanal) felhasználával. A kísérletek során az áramoltatáshoz Gilson márkájú HPLC pumpát használtam, 9. ábra. A mintát az oszlopokra 0,5 ml/perc sebességgel vittem fel, majd vizes mosást követően 0,6 illetve 1,0 ml/perc sebességgel végeztem az izokratikus elúciót. A folyamatot γ-számlálóval (Biomed) követtem nyomon, miközben 2 ml frakciókat szedtem melyeket később gamma spektrométerrel (Canberra HPGe) mértem, minden esetben 5%-nál kisebb mérési bizonytalanságig. Minden spektrumon minőségi és mennyiségi kiértékelést végeztem, amelyekhez a ¹⁵⁶Tb 534,32 keV-es, a ¹⁵⁹Gd 363,55 keV-es vonalát használtam fel.



9. ábra az elválasztáshoz használt rendszerek. Bal oldalon a GILSON márkájú HPLC rendszer, középen a GE tölthető kolonna (250x4,6mm), jobb oldalon a BioRad tölthető kolonna (115x15mm)

A terbium tartalmú frakciókat egyesítettem, majd megtisztítottam az eluenstől. A tisztítás kezdetén az oldat pH-ját 1-re csökkentettem 1 mol/dm³-os HCl oldattal, majd a korábban használt kation cserélő gyantával töltött, kisebb 40x8 mm méretű oszlopra injektáltam. Az oszlopot öt oszloptérfogatnyi 1 mol/dm³ HCl oldattal mostam, az α -HIBA eltávolítására. A megtisztított Tb³⁺-ot 4 mol/dm³ HCl oldattal eluáltam. Hasonló módszerrel a Gd³⁺ tartalmú frakciók is tisztíthatóak, a céltárgyanyag visszanyerése céljából, ami dúsított anyag használata során elengedhetetlen.

2.4.2 Dy³⁺ elválasztása Tb³⁺-tól

A ¹⁶¹Tb termelése a reaktorokban nagy mennyiségű gadolinium céltárgyanyag besugárzásával történik. A besugárzás során a kis mennyiségben keletkezik diszprózium is. A korábban bemutatott Tb^{3+} és Gd^{3+} elválasztására használt módszert próbáltam ki a Dy^{3+} , Tb^{3+} és a Gd^{3+} egyidejű elválasztására, amelynek a célja tiszta terbium előállítása volt.

Ezeknél a kísérleteknél 175 mg gadolínium(III)-oxidot és azonos mennyiségű terbium(III)-oxidot tartalmazó tablettát használtam a ciklotronon történt besugárzásokhoz. Az előzetes gamma spektrométeres vizsgálat alapján a céltárgy keverékből ¹⁵⁹Dy, ¹⁵⁶Tb és ¹⁵⁹Gd radioizotópok keletkeznek. Ezeket felhasználva sikerült követni az elválasztást.

0,14 mol/dm³ α -HIBA-t használtam a diszprozium(III) eluálásához az oszlopról, a Gd³⁺ és a Tb³⁺ esetében alkalmazott eluens, illetve a módszer további leírása 2.4.1 fejezetben található. Az elválasztáshoz a korábban is használt BioRad 115x15 mm 20 ml térfogattal rendelkező oszlopot alkalmaztam. A ¹⁵⁹Dy 58,00 keV-es vonalát használtam a γ -spektrumból a mennyiségi kiértékeléshez.

2.4.3 Mn²⁺ elválasztása Cr³⁺-tól

A növényekkel végezett vizsgálatokat ⁵²Mn radioizotóppal végeztem el. Elemi króm porból préselt tablettákat használtam. A besugárzott tablettákat 6 ml 6 mol/dm³ HCl oldattal oldottam fel, majd szárazra pároltam, utána újra feloldottam tömény sósavval. Az elválasztáshoz 20 ml BioRad AG 1-8X anion cserélő gyantát töltöttem BioRAD 115x15mm méretű tölthető oszlopba, amit 12 mol/dm³ sósavval kondicionáltam. Az 1.7 fejezetben bemutatott 5. ábra látható, hogy a mangán(II) 12 mol/dm³ koncentrációjú sósav oldat használata mellett kis mértékben kötődik az anion cserélő gyantára, míg a króm(III) egyáltalán nem kötődik. Ez azért lehetséges, mert az erélyes sósavas közeg alkalmazása során a MnCl₂.4H₂O molekulában egy vagy két víz is lecserélődik klórra, ezáltal negatív jellege lesz a molekulának. A mintákat különböző mennyiségű (4-10 ml) tömény sósavban oldottam az oszlopra injektálás előtt, annak érdekében, hogy meghatározzam a maximális injektálható térfogatot. A tömény sósavas mosást addig folytattam, amíg a CrCl₃.6H₂O látható zöld színe eltűnt az oszlopról lecsepegő oldatból. Ezután 6 mol/dm³ HCl oldattal folytattam az elúciót. A lecsöpögő oldat aktivitását figyelemmel követtem. Az aktivitás csökkenése után vízzel mostam az oszlopot, hogy minden szennyezőt eltávolítsak róla. Kezdetben a látható zöld oldat eltűnését követően egyenlő tömegű frakciókat szedtem. A frakciók mérése alapján a következő elválasztásnál csökkentettem a frakciók számát, eltérő térfogatú frakciókat jelöltem ki az elválasztás optimális végrehajtásához.

A mintákban a króm jelenlétét a ⁵¹Cr radioizotóp segítségével vizsgáltam, ami a céltárgyból 18 MeV energián szimultán keletkezik a ⁵²Mn radioizotóppal.

A 6 mol/dm³ HCl-val lemosott [⁵²Mn]MnCl₂-ot szárazra pároltam, majd vízzel oldottam fel a kísérletekhez.

2.5 Növénykísérletek

2.5.1 Növény egyedek előállítása

A növényeket a Debreceni Egyetem, Mezőgazdaság-, Élelmiszertudományi és Környezetgazdálkodási Kar, Növénytudományi Intézet, Alkalmazott Növénybiológiai nem önálló Tanszékén nevelték. Kétféle kukorica (*Zea mays* L.) hibridet használtam; 'P9903' (1-es típus) és 'Armagnac' (2-es típus). Az előkészítés során először a magok felszínét sterilizálták 6% (v/v)-os H₂O₂-dal 20 percig, majd alaposan leöblítették ioncserélt vízzel és 24°C-on csíráztatták nedves szűrőpapírok között 5 napig. A csírázást követően az erőteljes palántákat kiválasztották és átültették 5 literes cserépedénybe. A gyökereket körülvevő táptalajból

adódó esetleges eltérések elkerülése érdekében a növények nevelését folyadékban végeztük, táptalaj nélkül, hidrofonikus rendszerrel, a palánták nevelése a 10. ábra látható. Az edényekbe 10 palántát és 2,5 liter egyszikű tápoldatot raktak[103]. A tápoldat összetevői következők voltak: 2,0 mmol/dm³ Ca(NO₃)₂·4H₂O; 0,7 mmol/dm³ K₂SO₄; 0,5 mmol/dm³ MgSO₄·7H₂O; 0,1 mmol/dm³ KH₂PO₄; 0,1 mmol/dm³ KCl; 0,5 µmol/dm³ MnSO₄·4H₂O; 0,5 µmol/dm³ ZnSO₄·7H₂O; 0,2 µmol/dm³ CuSO₄.5H₂O; és 0,1 µmol/dm³ H₃BO₃. A vas 0,1 mmol/dm³ Fe-EDTA formában volt hozzáadva[104]. A növényeket erre a célra használt szobában nevelték, teljesen ellenőrzött körülmények között. A relatív pártartalom 65% és 75%, a nap-éjszaka ciklus 16-8 h, 25–20°C hőmérsékletekkel periodikusan. A fény intenzitása végig azonos volt, 300 µmol m⁻² s⁻¹ (körülbelül 13000 cd) nappali időszakban[105]. A kísérletekhez 3 leveles palántákat választottam ki.



10. ábra kukorica palánták a hidrofonikus nevelés közben a fitotronban.

2.5.2 Optimális oldatméret és pH hatás a növény kísérleteknél

A növénykísérleteknél használt palánták viszonylag kicsik voltak, szártól a levél végéig körülbelül 10 cm-esek. A hozzájuk tartozó gyökerek is hasonló mérettel rendelkeztek. A kísérleteknél a növények gyökerei 12 órán keresztül a radioizotópot tartalmazó oldatban merültek, a folyamatos tápoldat utánpótlás miatt a dinamikus vizsgálatoknál. A mangán(II)felvétel vizsgálatához kellően nagy tartó edényt kellett választanom, hogy a növények megfelelően elférjenek benne, ugyanakkor ügyelnem kellett arra, hogy az oldatban lévő aktivitás ne legyen túlságosan nagy. A miniPET kamerás mérések során a palánták a radioaktív anyagot tartalmazó tápoldatban voltak a kamera alatt, a felvételek idején, ezért fontos volt az aktivitás mértékének optimalizálása, mert a túl nagy háttér lehetetlenné tenné a kiértékelést. Többféle oldatméretet, illetve pohárméretet megvizsgáltam. A növényeket különböző mennyiségű oldatba helyeztem: 15-30-50 ml. Minden oldatba a korábban kikísérletezett 2,5MBq ⁵²Mn aktivitást helyeztem. Megfigyeltem, hogy az eltérő aktivitás koncentrációjú (MBq/ml) oldatokból milyen sebességgel veszik fel a palánták a mangán(II)-t.

A növények anyagcsere folyamatainak optimális működéséhez a tápoldatnak meghatározott pH tartományban kell lennie[106]. Ez a pH 6-6,5 közötti tartomány. A minták előállítása során az alkalmazott tápoldat és a hozzáadott hordozót nem tartalmazó radioaktív [⁵²Mn]MnCl₂ oldat pH-ját próbáltam ebben a tartományban tartani, minden mintát pH papírral ellenőriztem. A kísérleti tervek szerint minden minta 12 órán keresztül lesz a tápoldatában, ezért megvizsgáltam, hogy a tápoldat pH-ja mennyit

42

változik az idő elteltével és mikor válik a pH miatt szükségessé az oldat cseréje.

Az optimális 6-6,5 pH tartománynál alacsonyabb, 5-ös pH-jú oldatokban helyeztem el a növényeket különböző oldatméretekben és figyeltem a pH változását az időben. Az alacsonyabb 5-ös kiinduló pH lehetővé tette annak szemléltetését, hogy a növény a környezete pH-ját a számára optimálisabb 6-os felé állítja-e be, majd ezt követően miként változtatja meg hosszabb állási idő, 23 óra alatt.

2.5.3 MiniPET kamera tesztelése levegőn lévő tárgy megjelenítésére

A miniPET kamera által szolgáltatott kép a pozitron annihilációból származó gamma fotonok detektálásából származik. A kisállattal végzett kísérletek során a radioizotóp testen belül, néhány milliméteren belül annihilálódik. Azonban a növényekkel végzett vizsgálatok alkalmával fontos figyelni a különböző területek vastagságára. Különösen a levelek esetében kritikus, mivel 1 mm alatti vastagsággal rendelkeznek[82]. A miniPET kamera által megjelenített képek ilyen vékonyságú tárgyak esetében torzulhatnak (elmosódhatnak, megvastagodhatnak). Erre az esetre végeztem egy kísérletet, mely során két 0,22 mm vastag szűrőpapír korongra vittem fel 5 MBq ⁵²Mn aktivitást. A két papírt egymásba rakva egy X alakú fantomot kaptam. A fantomról PET képet készítettem a kamerával (11. ábra), amit a növényekhez is felhasználok abból a célból, hogy a vékony, levegőn lévő tárgy milyen mértékben torzul, illetve a kamera képes-e értékelhetően megjeleníteni.



11. ábra két egymásba illesztett szűrőpapír korongból készült fantom a miniPET kamera alatt

2.5.4 MiniPET kamera látóterének felmérése ⁵²Mn radioizotóppal

A kukorica palántákkal végzett kísérleteket az Atomkiben található miniPET-3 kamerával végeztem. A kamera leírása a 1.12 fejezetben található. A kamera látótere 7-8 cm átmérőjű 5 cm mély henger. Ebbe a látótérbe kell beilleszteni a növényeket oly módon, hogy a legtöbb információt nyerjük. Mivel a kamera szoftverével nem lehet a teljes látóteret egyik irányban sem összegezni, ezért a növényeket minél egyenesebben (síkban) kell behelyezni a kamera alá. Kísérletet végeztem abból a célból, hogy megvizsgáljam a teljes látótérben a kamera érzékenységének különbségeit, illetve a látótér szélének helyzetét és az ott látható esetleges torzulások jelenlétét, amelyeket figyelembe kell venni abban az esetben, ha a növény mérete ezt indokolja. Egy kör alakú lapra vittem fel 10 MBq ⁵²Mn aktivitást. A lap átmérője 19 cm volt, ami kitöltötte a kamera gyűrűjét, 12. ábra. Az aktivitást egyenletesen elosztva vittem fel a lapon lévő hézagok közé. A fantomról 3 órás gyűjtési idővel készítettem képet.



12. ábra MiniPET-3 kamera látótérnek vizsgálata, 19 cm átmérőjű körlappal. A hézagok közé [⁵²Mn]MnCl₂ oldat szárítva

2.5.5 Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵²Mn-vel növényekben miniPET kamerával

MiniPET kamerával végzett vizsgálatok során minden növényt 25 ml-es főzőpohárba helyeztem, amely 15 ml tápoldatot és 2,5 MBq [⁵²Mn]MnCl₂ oldatot tartalmazott. Amint a növényt bekerült az oldatba azonnal beraktam a kamera alá és elindítottam a mérést. Minden növényről 30 perces gyűjtési idővel vettem fel képeket 12 órán keresztül, amivel 24 db 3D felvételhez jutottam egy-egy mintáról. Minden mintánál azt a szeletet választottam ki, ami leginkább reprezentálja a mangán(II) helyzetét a növényben, amint a látható az alábbi ábrán, 13. ábra. Kétféle kukorica típussal végeztem el a méréseket azonos környezeti körülmények (hőmérséklet, páratartalom, fényintenzitás) között.



13. ábra a felhasznált PET kép magyarázata. A növényről 1,54 mm-es léptékkel a program szeletben készíti a képet a mintáról. A piros négyzettel jelölt kép kiválasztva az összehasonlításhoz

A miniPET kamera környezetének a hőmérsékletét és a páratartalmát folyamatosan ellenőriztem, hogy a kísérlet közben a környezeti paramérek állandóak legyenek. Szükség esetén mind a hőmérsékletet, mind a páratartalmat korrigáltam. A mérés ideje alatt folyamatosan megvilágítás alatt volt a növény megfelelő növénynevelő lámpa segítségével. A felvételek közben a nevelés során alkalmazott, 2.5.1 fejezetben leírt nappal/éjszaka ciklust állítottam be. Minden vizsgálatot a nappali időszakban végeztem. A növényeket a kamera alatt úgy pozícionáltam, hogy a növény szára és a levelek essenek bele a látótérbe, ahogy az alább a 14. ábra is látható. A kiértékelések során az összehasonlítandó képeken azonos intenzitás maximumot állítottam be.



14. ábra kukorica palánta a miniPET kamera alatt mérés közben, háttérben a megvilágításhoz használt lámpával. A szaggatott kör jelzi a kamera látóterét

2.5.6 Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵²Mn-vel növényekben gamma spektrométerrel

A kísérlethez a növények előkészítése és az alkalmazott környezeti körülmények (fény, páratartalom, hőmérséklet) megegyeznek a miniPET vizsgálatoknál használtakkal, a 2.5.5 fejezetben. A hasonlóság megőrzése miatt ebben az esetben is 25 ml-es poharakat és azonos aktivitás koncentrációjú oldatokat használtam. A PET felvételek és az előkísérletek alapján három időpontot állapítottam meg, amin keresztül ellenőrizhettem és kiegészíthettem a PET mérésekből származó adatokat. Ennek megfelelően a legrövidebb áztatási időnek 2 órát választottam, míg a leghosszabbnak 10 órát. A két pont között egy 6 órás időpontban is mintát vettem. Minden palánta egy megadott időt töltött a radioaktív oldatban, 15. ábra.



15. ábra kukorica palánták inkubálási idő alatt a radioaktív izotópot tartalmazó tápoldatban

Miután a kukorica palántát eltávolítottam az oldatból, alaposan megmostam tápoldattal, hogy a mérések során csak a gyökérbe már bejutott aktivitást számoljam bele, a felülethez kötődött mennyiség ne adjon fals pozitív értékeket. A lemosást 0,1 mol/dm3-os EDTA oldattal is megkíséreltem, de nem sikerült számottevő többlet aktivitást lemosni a gyökerekről a tápoldatos mosáshoz képest. A PET képek kiértékelése során 5 egység megjelenését figyeltem a képeken: mezokotil, szár, 3 különböző levél. Ennek megfelelően itt is minden egyes mintát 6 részre daraboltam fel (16. ábra), hogy a megfigyelt egységek azonosak legyenek, viszont ebben az esetben a gyökérben lévő radiomangán(II)-t is meg tudtam mérni. Mivel minden növény kicsit eltér a másiktól, a kiértékelésnél az összehasonlíthatóság érdekében tömeggel korrigáltam. Ezért minden darab pontos tömegét (0,1 mg-os pontossággal) lemértem, majd ezt követően lezárt zacskókba helyeztem őket, a levegőtől elzárva. A mintákat Canberra HPGe gamma spektrométerrel mértem le, 4096 csatornás analizátorral. A 52Mn 744 keV-es gamma vonalát használtam fel a kiértékeléseknél.

A radiomangán(II) felvételét a két típusú kukorica esetén egyszerre végeztem, hogy elkerüljem a környezeti változásokból adódó fals eltéréseket. Minden mérési pont három növény átlagából származik. Az egyes darabok összehasonlítása érdekében az adott darab a teljes növényhez képest felvett aktivitás %-ot adtam meg.



16. ábra kukorica palánta kísérlet közben. a) kukorica palánta a radioaktív oldatban a miniPET mérésekhez és az inkubációhoz a gamma spektrometriás méréseknél. b) kukorica palánta kivéve a radioaktív tápoldatból, daraboláshoz előkészítve. A számok jelzik a gamma spektrometriás mérésekhez használt darabokat (1-gyökér, 2-mezokotil, 3-szár, 4-öreglevél, 5-fiatal levél, 6legfiatalabb levél). c) a növény feldarabolva, csomagoláshoz és tömegméréshez előkészítve

2.5.7 ¹⁸F felvétel vizsgálata kukorica palántákban miniPET kamerával, összehasonlítva a ⁵²Mn felvétellel

A szakirodalom alapján a mangán(II) nem passzív úton, a vízzel közlekedik a növényekben, hanem aktív transzport segítségével[67], [69], [107]. A kísérletem célja, hogy megbizonyosodjak arról, hogy a képeken valóban a mangán(II) aktív felvételét és mozgását látom nem pedig csupán a vízben oldott ion passzív mozgását a folyadékkal. Ennek igazolására vízben oldott ¹⁸F-ion használtam, amivel a víz mozgása jellemezhető és

könnyebben kezelhető, mint a 2 perces felezési idejű ¹⁵O[108][109]. A ¹⁸F előállításához ¹⁸O-ban dúsított vizet sugároztam be protonokkal folyadéktargetben. A keletkező radioizotópot tisztítás után kevertem a tápoldathoz. A tisztítást erre a célra általánosan használt erős anion cserélő oszlopon (QMA sep-pak) végeztem, amivel a keletkezett ¹⁸F⁻ elválaszottam a céltárgyként használt víztől[110]. A növényt a tápoldatba helyezése után azonnal a miniPET kamera alá tettem és dinamikus felvételt készítettem róla. A dinamikus felvételek mellett készítettem "statikus" képet is, amelynek során a növényeket az aktivitást tartalmazó tápoldatba helyeztem és 1 órán keresztül hagytam benne. Az idő letelte után elvágtam a növényeket a mezokotilnál. Az így kapott mintákat plexi lapra rögzítettem, ügyelve arra, hogy ne legyen a plexi lapra szorítva, 17. ábra.



17. ábra kukorica palánta plexi lapra rögzítve PET méréshez

Az összehasonlítás érdekében a plexi lapra preparált minta mérését ⁵²Mn radioizotóppal is elvégeztem.

2.5.8 Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵²Mn-vel növényekben miniPET-el különböző PEG tartalom mellett

Ezeknél a kísérleteknél a korábbi 2.5.5 fejezetben leírt módhoz hasonlóan jártam el. Azonban az alkalmazott tápoldatok PEG[76] oldatot tartalmaztak különböző mennyiségben annak érdekében, hogy a vízpotenciál megváltoztatásával szárazságot imitáljak a növényeknek. A tápoldatokban 5%(m/m)-10%(m/m)-20%(m/m) PEG-et alkalmaztam, hogy enyhébbtől az egészen nagymértékű víz/tápanyag felvételt visszaszorítsam, ezáltal a növényeknek különböző mértékű szárazságot imitáljak. Minden növény kizárólag a kísérlet közben kapta meg a speciális tápoldatot, az előzetes nevelés során a 2.5.1 fejezetben leírtak szerint. A normálistól való eltérés kimutatása érdekében a kísérleti sorba ideális, PEG-et nem tartalmazó tápoldattal ellátott mintákat is raktam. A kísérletek során folyamatos környezeti monitoringot használtam és csak azonos paraméterek esetén vetettem össze a mintákat.

2.5.9 Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵²Mn-vel növényekben gamma spektrométerrel különböző PEG tartalom mellett

Az előző fejezetben (2.5.8) leírt PEG tartalmú tápoldattal végzett kísérleteket elvégeztem a gamma spektrometriás módszerrel is. A kivitelezés módja megegyezik a már korábban kidolgozottal és leírttal a 2.5.6 fejezetben. A sorba minden esetben került egy PEG-et nem tartalmazó tápoldattal ellátott mintasorozat. A korábbi vizsgálatoknál használt 3 időpont (2,6 és 10 óra) elegendőnek bizonyult ahhoz, hogy különbséget tudjak tenni a két hibrid között, ezért itt is ezt használtam.

2.5.10 Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵²Mn-vel növényekben gamma spektrométerrel különböző PEG tartalom mellett, PEG tartalmú és ideális tápoldatban nevelt minták összehasonlítása

A korábbi fejezetben 2.5.9 leírt módon végeztem a vizsgálatokat. A résztvevő alanyok egy része a korábban végzett kísérletekhez hasonlóan a kísérlet ideje alatt kapta meg a PEG tartalmú tápoldatot, a másik csoport pedig már a nevelés ideje alatt is 10%(m/m) PEG tartalmú tápoldaton nőtt. Célom az volt, hogy megvizsgáljam az állandó "szárazság stressz" hatásának kitett példányok és a csak kísérlet közben PEG-et kapott példányok mangán(II) felvételében milyen eltérés mutatkozik. A kísérletekhez az 1-es típusú hibridet használtam.

2.5.11 Ideálistól eltérő hőmérséklet hatásának vizsgálata a kukorica palánták mangán(II) felvételére gamma spektrométerrel

A korábbi fejezetben 2.5.6 leírt kísérlethez hasonló módon végeztem el itt is a vizsgálatokat, azonban nem a nevelés során használt, 2.5.1 fejezetben leírt hőmérsékleten. Ettől két eltérő hőmérséklet értéket választottam egy alacsonyabbat (17°C) és egy magasabbat (35°C). A két hőmérséklet csoport párhuzamosan futott két külön szobában. A hidegebb csoport egy légkondicionált szobában volt, ahol klíma berendezés tartotta a szükséges hőmérsékletet. A hőmérsékletet folyamatosan nyomon követtem egy erre alkalmas műszerrel. A melegebb csoport számára dobozt építettem, ahol általam összerakott Arduino vezérelt fűtőrendszerrel tartottam fenn szükséges 35°C-ot. A doboz hőmérsékletét folyamatosan nyomon követtem egy szintén általam épített arduino alapú regisztráló egységgel.

2.5.12 Kukorica palánták mangán(II) felvételének vizsgálata éjszakai szakaszban gamma spektrométerrel

A korábbi fejezetben 2.5.6 leírt kísérlethez hasonló módon végeztem el itt is a vizsgálatokat, viszont a kísérlet ideje nem a nappali szakaszba esett, hanem a 2.5.1 fejezetben leírt éjszakai időszakra. Mivel ez a szakasz 8 óra volt a palánták nevelése során, ezért a kísérlet során sem akartam megváltoztatni a sötét időszakot, hogy az 10 óráig tartson. Ezért 4 időpontot határoztam meg, 2 és 6 óra, mint a többi esetben, 8 óra, ami a sötét szakasz vége volt, ezután kapcsolt a lámpa, illetve 10 óra, ez utóbbi minták már 2 óra fényt kaptak. Célom azt volt, hogy megfigyeljem, hogy miként változik a mangán(II) radioizotóp eloszlása a kukorica palántákban fényhiány hatására.

2.5.13 Csökkentett fényintenzitás hatásának vizsgálata a kukorica palántákra gamma spektrométerrel

A korábbi fejezetben 2.5.6 leírt kísérlethez hasonló módon végeztem el itt is a vizsgálatokat. A kísérlet során a kukorica palánták egy részét leárnyékoltam. 50%-kal kevesebb fényt kaptak, mint normál esetben. Célom az volt, hogy a csökkent fényintenzitás hatását megfigyeljem a kukorica palánták magán felvételében és eloszlásában.

3 Kísérleti eredmények és kiértékelésük

3.1 Gd elektrolizis eredmények

A folyamat során állandó, finom buborék képződést figyeltem meg, amely az elektrolízis előrehaladtával fokozódott. Az elektrolízist 180-200 V-nál állítottam le, ekkor már intenzív gázképződést tapasztaltam, 50-55 perc elteltével.

A cellafeszültség 25 mA állandó áram mellett a kezdeti 60 V-os feszültségről 6-7 perc alatt 35 V-ig esett, majd újra 60 V-ra emelkedett 10-15 perc alatt. A feszültség fokozatosan emelkedett 180-200 V-ra 30-35 perc alatt a folyamat végéig. A folyamat során fellépő feszültség értékek nagynak tűnhetnek, hiszen a gadolínium standard potenciálja mindösszesen -2,27 V és a Nernst egyenlet (4. számú egyenlet):

$$E = E^{0} + \frac{R \times T}{z \times F} \times ln \frac{c_{ox}}{c_{red}}$$
(4)

(ahol, E az elektródpotenciál, E⁰ a standard elektródpotenciál, R az egyetemes gázállandó, T a hőmérséklet Kelvinben megadva, z az oxidált és redukált forma közötti oxidációs szám különbség, F a Faraday állandó, cox és cred az oxidált és redukált forma koncentrációja) segítségével számolva az elektrolízishez szükséges feszültség érték nem haladja meg a 3 V-ot. Azonban figyelembe kell venni az alkalmazott elektrolit oldat összetételét, amely az esetemben 97,5%-ban abszolút etanolt tartalmazott. A tiszta abszolút etanol vezetőképessége 1,3*10⁻⁷ S/m, ami elég alacsony érték (összehasonlítva például a desztillált víz vezetőképessége 4,2*10⁻⁵ S/m) egy ideális só oldat vezetőképességéhez képest (például a tengervíz vezetőképessége 4,8 S/m). Ebből adódik az elektrolitoldatom megnövekedett ellenállása, ami a magas feszültség értékeket okozta az

állandó áramerősség mellett. Az abszolút etanol alkalmazása nélkülözhetetlen volt a buborékfejlődés csökkentése érdekében, mert csak így eredményezett a folyamat mechanikailag stabil felületet.

A fent leírt körülmények között 4 mg/cm² vastag, sima és tapadó gadolínium rétegeket készíthettem. Az ismételt kísérletek során a lerakódott réteg vastagságának változását figyeltem meg, 2 és 4 mg/cm² között, \pm 2 %-os hibán belül, ami 30–60 %-os hozamnak felelt meg. Egy tipikus minta az alábbi ábrán látható, 18. ábra.



18. ábra elektrolízissel készült gadolínium céltárgy Al hátlapon

Az optimális minőséget 25 mA árammal értem el. Az alacsonyabb áramok lassú lerakódást és a szükségesnél vékonyabb rétegeket eredményeztek, míg nagyobb áramoknál az intenzívebb H₂-fejlődés részben megakadályozta a gadolínium lerakódását, és rossz minőségű rétegeket eredményeztek.

A minták mechanikai stabilitását különböző ejtési és hevítési kísérletekkel ellenőriztem. Az ejtés során szélüknél fogva, 20 cm magasról fémfelületre ejtve a céltárgyak sértetlenek maradtak. A hevítések során a besugárzáskor fellépő hő hatását imitáltam. A céltárgyakon nem tapasztaltam károsodást miután 3 óráig 250 °C-os hőnek tettem ki őket.

Több elkészült céltárgyat teszteltem úgy, hogy besugároztam őket az Atomki ciklotronján, különböző energiájú protonnyalábok (14,5–18,0 MeV). A céltárgyak kibírták a 100 nA nyalábáramot 18 MeV-en. A besugárzott minták gamma spektrumában mind a két keresett terbium radioizotópot megtaláltam.

3.2 Elválasztási eredmények

3.2.1 Tb³⁺ elválasztása Gd³⁺-tól analitikai méretű kolonnán

A radioterbium(III) elválasztását vizsgáltam 175 és 350 mg besugárzott Gd₂O₃ target anyagtól analitikai méretű tölthető HPLC oszlopon 1,0 és 0,6 ml/perc elúciós sebességgel. A radioterbium(III) 175 mg besugárzott gadolínium(III)-tól való elválasztásával kapott eredmény, 1,0 ml/perc elúciós sebesség mellett látható a 19. ábra, míg a 350 mg besugárzott céltárggyal kapott eredményt, 0,6 ml/perc sebességgel a 20. ábra mutatja. A besugárzások során 50 nA-es nyalábáromot használtam, a kísérlet alatti felesleges sugárterhelés elkerülése érdekében. Ebben a tartományban a keletkezett radiogadolínium mennyiségét a HPLC radiodetektora a radioterbium háttér mellett nem tudta megjeleníteni. Az elválasztás közben frakciókat szedtem, melyeket később gamma-spektrométerrel mértem a pontosabb eredmény érdekében. Az ábrákon lévő pontok a frakciók gamma méréséből származnak.

Az eluálást a 0,2 mol/dm³ α -HIBA-val kezdtem, és addig folytattam, amíg az aktivitás a HPLC gamma számlálóján lévő radioterbium jel maximuma a 7%-ára csökkent, majd 0,5 mol/dm³ α -HIBA-ra váltottam. 58-59 ml-re volt szükségem a hígabb eluensből a terbium(III) lemosásához az

56

oszlopról. A gadolínium(III) már a hígabb eluenssel is elkezd lemosódni az oszlopról kis mennyiségben. A gadolínium(III) szennyezés elkerülhető, ha 41 ml-ig gyűjtjük a frakciókat. Ebben az esetben a teljes képződött terbium(III) 85 $\pm 2\%$ -át sikerült a radioanalitikai vizsgálatok alapján tisztán, gadolínium(III) mentesen előállítani. A kísérletek alapján az elválasztás megvalósítható mind 175, mind 350 mg anyagmennyiségből kiindulva, kis méretű oszlopon. A módszer segítségével az oszlopról minden radioaktivitást sikerült lemosni. A gadolínium(III) lemosása az oszlopról szintén sikeres volt, ami fontos a céltárgy visszanyerése szempontjából, a dúsított anyag újra felhasználása miatt.



19. ábra Terbium(III) elválasztása gadolinium(III)-tól 250x4,6 mm oszlopon, 1 ml/perc sebességgel, 175 mg Gd_2O_3 target tömeg



20. ábra Terbium(III) elválasztása gadolinium(III)-tól 250x4,6 mm oszlopon, 0,6 ml/perc sebességgel, 350 mg Gd_2O_3 target tömeg

A mérések után az egyesített frakciók tisztása során a felvitt radioaktivitást teljes egészeben sikerült lemosni, megtisztítani az eluenstől és terbium(III)-klorid formában előállítani. A kísérletek alapján a nagyobb tömegű, 350 mg targetanyagú tabletta jobban használható, mivel kevésbé érzékeny a mechanikai hatásokkal szemben.

3.2.2 Terbium(III) gadolinium(III)-tól való elválasztásának hatékonyságának összehasonlítása analitikai és félpreparatív méretű oszlopon

A korábbi fejezetben, 3.2.1, használt oszlop hatékonyságát egy nagyobb méretű oszloppal is összehasonlítottam. A 21. ábra mutatja be a frakciók méréséből kapott elválasztási görbét. A nagyobb oszlophoz jobbnak láttam a kisebb elúciós sebességet választani, 0,6 ml/perc. Az elúciót 0,2 mol/dm³ α -HIBA-val kezdtem meg, majd a radioterbium(III) aktivitásának csökkenése (100 ml eluált tömeg után) 0,5 mol/dm³ α -HIBA-val mostam

az oszlopot annak érdekében, hogy minden maradék aktivitást eltávolítsak az oszlopról. Ebben az esetben nem tudtam gadolínium(III)-at lemosni az oszlopról a hígabb eluenssel, azonban a terbium csúcsalakja is torzul. Az ötször több gyantát tartalmazó oszloppal a radioterbium(III) 93 \pm 2%-át sikerült gadolínium(III) mentesen megkapni.



21. ábra Terbium(III) elválasztása gadolinium(III)-tól 115x15 mm oszlopon, 0,6 ml/perc sebességgel, 350 mg Gd_2O_3 target tömeg

Összehasonlítva a korábbi fejezetben, (3.2.1) elért eredménnyel, 20. ábra, ez nem jelentős többlet és az elválasztás ideje és anyagigénye is nagyobb és az elválasztás a kisebb gyanta tömegű, 250x4,6 mm-es oszloppal jól működik.

3.2.3 Diszprózium(III) elválasztása terbium(III)-tól

Az alábbi ábrán látható, 22. ábra, hogy 0,14 mol/dm³ α -HIBA eluenssel sikerült a Dy³⁺-ot eluálni az oszlopról. A Tb³⁺ csak a nagyobb koncentrációjú 0,2 mol/dm³-os eluenssel kezd el lemosódni jelentős mértékben az oszlopról. A Gd³⁺ frakció az 0,5 mol/dm³-os koncentrációjú

eluenssel mosható le az oszlopról. A folyamat során a keletkezett radioterbium 98 $\pm 2\%$ -át sikerült mind Dy, mind Gd mentesen előállítani. A módszer másik lehetséges felhasználása a diszprózium(III) terbium(III) "generátor" lehet. Ebben az esetben a folyamat elején az oszlopról lemosódó diszprózium(III)-at gyűjtöm össze. Az ábrán látható, hogy elsőre a diszprózium csak kis mennyiségét 34 $\pm 2\%$ -át sikerült terbium mentesen előállítani. Azonban a teljes diszprózium frakcióban mindössze kis mennyiségű terbium szennyező található, ami jelen esetben a teljes terbium mennyiség 0,3%-a van. Az összegyűjtött diszprózium(III) frakciót egy újabb oszlopon megtisztítva a radionuklidos tisztaság tovább növelhető.



22. ábra A frakciók mérésből származó adatokból rajzolt kromatogram a diszprózium(III), terbium(III) és gadolínium(III) egyidejű elválasztásáról

A módszer alkalmas a reaktoros besugárzásoknál előállított radioterbium tisztítására egyszerre a diszprózium és a gadolínium szennyezőktől. Ezentúl a radioterbium diszpróziumon keresztül történő előállítására is felhasználható.

3.2.4 Mn²⁺ elválasztása Cr³⁺-tól

A feloldott céltárgyakat különböző mennyiségű tömény sósavban vettem fel az elválasztáshoz. A kísérletek eredményei alapián az alkalmazott rendszeremben a maximálisan alkalmazható mennyiség 4 ml volt. Nagyobb injektált térfogat esetén nem volt megfelelő az elválás. Ezzel az oldatmennyiséggel sikerült a keletkezett mangán(II)-őt elválasztani a króm(III) céltárgytól. A nagymennyiségű króm(III)-at tartalmazó frakció szemmel jól látható színnel jön le az oszlopról. Előszőr pontosabb szedést végeztem, amely során a látható zöld oldatot (CrCl₃.6H₂O) egybe gyűjtöttem, majd a továbbiakban 20 db 1,5 ml-es egységet gyűjtöttem, melyet pontosan megmértem gamma spektrométerrel. A lenti ábrán, 23. ábra, az első pont az addig összesen leszedett zöld frakciót jellemzi, amiben csak a ⁵¹Cr volt megtalálható. A mintákban a króm(III) tartalom az 5. frakcióban tűnik el, 70 percnél. A mangán(II) már a 2. frakcióban is megjelenik, viszont nagyon kis mennyiségben. A növekedés 67 percnél indul és folyamatosan emelkedik. Ha a mangán(II) gyűjtését 75 percnél kezdem meg, akkor a radioaktív mérések alapján, a teljes mangán tartalom 96%-át tudom króm mentesen összegyűjteni további felhasználásra.


23. ábra 21 frakcióba szedett mangán(II) elválasztás gamma spektrometriás mérésének eredménye. Az oszlopról zöld színnel lecsepegő oldatot egybe gyűjtöttem, a teljes 52 perces gyűjtésből származó aktivitás látható az első posntban

A korábbi eredmények alapján tovább finomítottam az elválasztást és 10 frakcióban szedtem le, 24. ábra. A látható zöld részt most is egybe gyűjtöttem, majd kisebb egységeket szedtem figyelve, hogy az aktivitás mikor kezd el emelkedni.



24. ábra 10 frakcióban leszedett mangán(II) elválasztás frakcióiról készült kép

A 4-es frakció már színtelen aktivitása még nagyon alacsony és gamma spektrometriás mérések alapján még tartalmaz krómot. Jelentősebb növekedés figyelhető meg az 5-ös frakcióban és a pontosabb mérések

alapján már nem tartalmaz krómot. Az ezt követő három ampullát közel tele szedtem, a 8-as ampullában már jelentősen visszaesett az aktivitás. A 6-8 frakciók tartalmazzák mangán 98%-át, a gamma spektrometriás mérések alapján króm mentesen.

A folyamatot tovább fejlesztve, a 10 frakciós szedést követően 8 frakciós elválasztást dolgoztam ki, manuális mintaváltóval, 25. ábra. Egy tipikus elválasztás során a frakció tömegek és az aktivitások alakulása a 2. táblázatban látható.



25. ábra manuális mintaváltó 8 frakciós mangán(II) elválasztáshoz

1-es frakció: króm(III) tartalmú frakció, körülbelül 45 perc alatt jön le az oszlopról, addig folytatom a gyűjtését amíg a zöld szín teljesen eltűnik az oszlopról és a lecsepegő oldat is színtelennek tűnik.

2-4-es frakciók: 2-6 perces gyűjtési idővel szedem őket. Az oldat színét és aktivitását ellenőrzöm, rendszerint a 3-es frakció már teljesen színtelen

volt és kis aktivitású vagy inaktív. A 3-as frakciónál már 6 mol/dm³-os HCl oldattal mostam az oszlopot. Amennyiben a 3-as frakció inaktív volt rövid ideig gyűjtöttem a 4-esbe, ha nagyobb aktivitás ugrás volt tapasztalható benne akkor azonnal az 5-ösre váltottam.

5-ös frakció: ez tartalmazza termelt ⁵²Mn radioizotópot, gyűjtési ideje rendszerint 20-40 perc (az oszlop sebességétől függően). Az oszlopon színváltozás jelzi a 6 mol/dm³-os sósav mozgását, a gyűjtés rendszerint a teljes 6 mol/dm³-os átmosást követően 5 percig tartott. A főfrakció tisztaságát színre, azonnal és a mangán-52 lebomlását követően radionuklidos tisztaságra ellenőriztem gamma spektrométerrel. A korai szakaszokban ICP-MS vizsgálatok során már 1 elválasztás után sikerül a króm mennyiségét 6 ppm alá redukálni.

6-os frakció: ennél a frakciónál töltöttem vizet az oszlopra, 15 percig szedtem. Jellemzően kis aktivitás tartalmú frakció, a bepárlás során egyesítem az 5-ös frakcióval.

7-8-as frakciók: vizes mosása az oszlopnak. A kísérletekhez nem használom fel őket, az esetleges további fémszennyezők elkerülése érdekében, csupán a maradék szennyezők eltávolítására szolgál, ezáltal a gyanta újra felhasználható. A vizes mosás során kis mennyiségben időnként megjelent némi aktivitás (⁵²Mn).

Frakció	Aktivitás (MBq)	Frakció tömege (g)
1	0,077	22,8
2	0,077	1,9
3	0,456	3,1
4	0,237	0,8

2. táblázat 8 frakciós mangán(II) elválasztás során a frakciók aktivitása és tömege

5	54,40	14,6
6	2,66	5,0
7	0,033	14,8
8	-	-

Az így előállított [52Mn]MnCl2-ot használtam fel a további kísérletekhez.

3.3 Növénykísérletek eredményei

3.3.1 Optimális oldatméret meghatározása

A különböző térfogatok esetében az eltérés a 15ml-es tápoldatban lévő minták által felvett aktivitáshoz mennyiségéhez képest 1 óra múlva 44% illetve 34%-al kevesebb a 30 ml és 50 ml tápoldatban lévő minták esetében. Ez a különbség csökken az idő előrehaladtával, az 50 ml tápoldatban lévő minták esetében nagyobb mértékben mint a 30 ml tápoldatban lévő mintáknál (26. ábra). Az 50 ml tápoldatban lévő mintáknál 9 óra múlva már csak 4%-kal kevesebb, míg a 30 ml tápoldatban lévő mintáknál 28%-kal kevesebb az aktivitás.



26. ábra kukorica palánták által felvett aktivitás különböző méretű oldatokból

A kapott eredmények alapján a növények a 15 ml-es térfogatból veszik fel a leghamarabb az aktivitást, majd egyenletesen növekszik tovább a felhalmozott radioizotóp mennyisége. A 50 ml-es oldatból lassabban indul meg a felvétel és idővel kiegyenlítődik a felvett mennyiség a 15 ml-essel. 30 ml tápoldatból az 50 ml-hez hasonlóan indul a felvétel viszont az idő előrehaladtával sem éri utol a másik két térfogatot és a görbe meredeksége is kisebb. Ezek alapján a legnagyobb aktivitás koncentrációjú oldatból veszik fel a mangán(II)-t a leggyorsabban. Ebben az oldatban alkalmazott 0,16 MBq/ml aktivitás koncentrációt a többi oldatban alkalmazva a miniPET kamránál túl nagy hátteret generál. kamera А alá legoptimálisabban a 25ml-es főzőpohárral fér be a minta és ebben a pohárban könnyen használtható a legjobban teljesítő 0,167 MBq/ml koncentráció, 2,5 MBg aktivitással. Mivel a miniPET kamerához kiegészítő mérésnek szánom a gamma spektrometriás méréseket, ezért az

66

azonos körülmények miatt itt is a 25 ml főzőpohárban 15 ml tápoldattal dolgoztam.

3.3.2 pH vizsgálat

A különböző térfogatú oldatokban pH 5-ről indulva minden mintában azonos sebességgel változott a pH. 3 óra alatt az oldat pH-ja 6-osra, 10 óra múlva 6,2-esre, 24 óra múlva 6,4-ig emelkedett (27. ábra). A görbe elején tapasztalható meredek emelkedés miatt várható, hogy a kis mértékű eltérés a 6-6,5-ös, optimális pH tartománytól gyorsan korrigálódik. Ezek alapján a kísérletekhez felhasznált oldatok pH-jának kontrolljára elegendő a pH papíros ellenőrzés, nem igényel pontosabb, műszeres ellenőrzést.

A görbe alapján látszik, hogy a kísérlet tervezett ideje alatt (12 óra) a tápoldat pH-ja nem változik drasztikusan, 24 óra alatt sem emelkedik 6,4 fölé a pH, ami még a kísérlethez szükséges 6-6,5 pH tartományba esik. Ezek alapján nem szükséges a 12 órás kísérlet ideje alatt sem a növény alatt lévő tápoldatot frissre cserélni.



27. ábra a pH változása különböző mennyiségű tápoldatban az idő előrehaladtával

3.3.3 MiniPET kamera tesztelése levegőn lévő tárgy megjelenítésére

A növényekről készülő PET képeknél a mangán(II) helyzete alapján szándékozom a különböző kukorica hibrideket megkülönböztetni. A gyökér folyamatosan a radioaktív oldatban lesz, így annak megjelenítésére nincs lehetőség. A leveleknél felmerült a probléma, hogy túlságosan vékonyak és nem, vagy csak nagy torzítással lesznek láthatóak. Ennek kipróbálására készült ez a kísérlet. Az X alakban összerakott szűrőpapírok legvékonyabb része 0,22 mm, ami elég volt a levelek szimulálásához. A PET képeken a szűrőpapírok alakja jól látható, 28. ábra. Vastagsága a képek alapján 1-2 mm. A kapott eredmények alapján a levelek megjelenítésre van lehetőség, ha kellő mennyiségű aktivitást halmoznak

fel. A nagyon közel lévő levelek, például legfiatalabb levél, ami a nagyobb levelek által van körülvéve, nem fognak látszódni.



28. ábra Szűrőpapír korongokról készült PET kép ⁵²Mn radioizotóppal. Balról jobbra haladva szemből, felülről, oldalról.

3.3.4 MiniPET kamera látóterének felmérése ⁵²Mn radioizotóppal

A kamera látóterének pontos ismerete fontos a minta elhelyezésének szempontjából. A kísérletekben felhasznált palánták nagyon korai növekedési szakaszban vannak, viszont még így sem férnek be a kamera látótérébe teljes mértékben. Ezért kell precízen pozícionálni a mintákat, hogy a képeken rajta legyen a szükséges információ. A kamera teljes gyűrűjének belső átmérője 20 cm, ezért készítettem egy olyan fantomot, ami a teljes gyűrű belsejét kitölti. Ez ugyan túlméretes mivel a feltételezett látótér csak a gyűrű közepén 8-10 cm, viszont így a detektorokhoz közeli, látótéren kívüli aktivitás hatása is felmérhető. Mind a 4 irányba 5 folt jelent meg a képen, 29. ábra. A foltok megjelenése alapján egy 11 cm sugarú körből származó információt lehetséges felhasználni. (32 folt, foltonként 0,3 MBq). Mivel a foltok egyenként kis aktivitásúak, ezért ahhoz, hogy jól látszódjanak a képeken, az intenzitás maximumát alacsonyra kellett állítani (ez a helyzet fenn fog állni a növények esetében is), ami miatt a látótér szélén zaj jelent meg. Emiatt a hasznos látótér 9 cm-re csökken. A lenti, jobb oldali képen (29. ábra) jól látszik, hogy a fantom nem teljesen sík.

Emiatt a görbület miatt nem sikerült a szemből (bal oldali rész) kapott képen az összes foltot egyszerre megjeleníteni.



29. ábra Kör alakú fantomról készült PET kép a miniPET kamera látóterének felmérésére. Foltokban ⁵²Mn radioizotóp rögzítve

3.3.5 Különböző típusu kukorica palánták mangán(II)-felvételének

nyomon-követése miniPET kamerával

A PET mérések során minden 30 perces mérési idő után az összegyűjtött adatokból egy 3D -s képet készítettem, hogy megállapítsam a radioaktivitás eloszlását az adott időszakban. A két különböző kukorica hibrid radioaktív mangán(II) felhalmozódását és eloszlását a 30. ábra és a 31. ábra képei mutatják. A mérés során a növény végig a radioaktív oldatban volt, ezért a gyökér megjelenítésére nem volt lehetőség. A folyamat előrehaladtát 5 különböző részegység megjelenése és azok intenzitása alapján jellemeztem. A részegységek megegyeznek a gamma

mérések során használt darabolási sémával. A mezokotil egyik képen sem jelent meg, amit a radioaktív oldathoz való közelsége okozhatott.

Az első látható pont a szár alsó részén 1 óra múlva jelenik meg az 1. típusnál (30. ábra) és 2 óra elteltével a 2. típusnál (31. ábra). 9 óra elteltével a teljes szár láthatóvá vált és az 1 -es típusú kukorica lényegesen több radioaktivitást halmozott fel, mint a 2 -es típus, az intenzitások alapján. A PET mérések eredményeiből látszik, hogy a két különböző típusú kukorica majdnem azonos felvételi idővonalat mutat, de eltérő a felvett mennyiség. A MiniPET kísérletek ezen eredményei azt mutatják, hogy sokkal intenzívebb felvétel figyelhető meg az 1-es típusú kukoricánál. Mindazonáltal a leveleket a PET kamera nem tudja megjeleníteni, valószínűleg azért, mert a pohárban lévő aktivitás által generált háttér mellett, a korlátozott expozíciós idő nem volt elegendő a küszöbérték eléréséhez.

0-0.5

3-3.5

6-6.5

9-9.5



30. ábra az 1-es típusú kukorica palánta mangán(II) felvételéről készült PET képek az időben



31. ábra a 2-es típusú kukorica palánta mangán(II) felvételéről készült PET képek az időben







5-12h



72

3.3.6 Különböző típusú kukorica palánták mangán(II)-felvételének nyomon-követése gamma spektrométerrel

A miniPET kamerával végzett kísérletek alapján látható különbségeket mértem ki a két hibrid között. A gamma-mérések eredményei szerint is észrevehetjük a kétféle kukorica között a különbségeket. A három kiválasztott időpont (2, 6 és 10 óra) használatával jelenítettem meg az eltéréseket a két hibrid között (32. ábra).

A korai 2 órás időpontban még mind a két típusnál a gyökérben és a mezokotilban van aktivitás, egy kis mennyiség eljut már a szárba. 4 óra elteltével már mérhető különbségek mutathatóak ki. Az 1-es típus esetében minden levélben található aktivitás, a teljes növényben lévő aktivitás mintegy 5-10%-a. A 2-es típus esetén a szárban hasonló mértékben emelkedik az aktivitás mennyisége, viszont a levelekig csak kis mennyiség jut el, a három levél a növény teljes aktivitásának 5%-át tartalmazza, ez 15%-al kevesebb mint az 1-es típus esetén. 10 óra elteltével az 1-es típus leveleiben mérhető az aktivitás 10-15-18%-a. A 2-es típus esetén a legöregebb levélbe (levél #4) kis mennyiségű aktivitás mérhető, míg a másik két levélben található az aktivitás 8-10%-a. A két hibrid leveleiben mérhető aktivitások között 22% különbséget tapasztaltam.

A PET képeken látható, hogy a két szárba időben eltérően jut el az aktivitás és 10 óránál az 1-es hibrid intenzitása nagyobb. A gamma mérések alapján a szárak hasonló sebességgel veszik fel az aktivitást, viszont az 1-es esetében a már 6 óránál emelkedik a levelek mangán(II) tartalma, míg a 2es esetében csak 10 óránál tapasztalhatóak. Az eltérések nem csak a felvett mennyiségekben tapasztalható, hanem annak eloszlásban is a 3 levél

között. Az alábbi táblázatban (3. táblázat a levelek által felhalmozott A% különbségek az 1-es hibridhez viszonyítva) a levelek közötti eltérés van kiemelve. Látható, hogy a legöregebb levél mangán(II) ellátása közötti különbség a legszignifikánsabb, 3% 6 óránál, 13% eltérés adódik 10 óra alatt. A másik kettő közötti eltérés időben nem távolodik el ennyire egymástól.



32. ábra két különböző kukorica hibrid mangán(II)-felvétele gamma spektrométerrel mérve. Balra 1-es, jobbra a 2-es hibrid.

3. táblázat a levelek által felhalmozott A% különbségek az 1-es hibridhez viszonyítva

	2 óránál	6 óránál	10 óránál
Levél #4	0.25	3.31	12.96
Levél #5	0.44	7.48	3.17
Levél #6	-0.58	4.09	6.19
L4+5+6	0.11	14.88	22.32

Ezek alapján a gamma spektrometriás mérések segítségével különbséget tudok tenni a két hibrid között a 3 időpont felhasználásával.

3.3.7 ¹⁸F felvétel vizsgálata kukorica palántákban miniPET kamerával, összehasonlítva a ⁵²Mn felvétellel

A korábbi mangán(II)-vel végzett kísérletek alapján tudom, hogy a PET képen 1,5 és 2 óra után jelenik meg az első folt a szár alján. Ezért, ha a ¹⁸F-hamarabb jelenik meg a PET képeken, gyorsabban mozog, akkor igazoltam, hogy a mangán(II)-vel végzett vizsgálatok során nem csupán a víz keringését látom. A dinamikus felvételeken sajnos nem látható semmi. A ¹⁸F rövidebb felezési idejét kompenzálandó a mangán(II)-nél alkalmazott aktivitás kétszeresét használtam. Ez az aktivitás viszont akkora hátteret generált a kamera alatt, hogy nem sikerült a dinamikus felvételen megjeleníteni, 33. ábra.



33. ábra kukorica palántáról készült dinamikus ¹⁸F felvétel PET képe XX óra után

Mivel a dinamikus vizsgálat nem vezetett kiértékelhető eredményre, a miniPET kamerával statikus képeket készítettem. A plexire rögzített növényről az alábbi képeket kaptam 1 óra gyűjtési idővel (34. ábra). A szeleteken látszik, hogy a ¹⁸F⁻ 1 óra alatt a kukorica minden részét elérte, a szár és a levelek is láthatóak.



34. ábra Plexi állványra rögzített kukorica palántáról készült PET felvétel 18F-al, 1 órás gyűjtési idővel, axiális szögből, 28 szelet

Ezzel szemben a mangán(II)-vel készült hasonló felvételen a szár legalsó részén látható apró, alig látható folt jelzi a mangán(II) halmozást (35. ábra).

35. ábra Plexi állványra rögzített kukorica palántáról készült PET felvétel ⁵²Mn-vel, 1 órás gyűjtési idővel, axiális szögből, 28 szelet

Ezek alapján kijelenthető, hogy a mangán(II) nem a vízzel közlekedik a növényekben és a vizsgálatok során mért eredmények nem csak a víz felvétel visszaszorítását jelzik, hanem a tápanyag felvétel változását is.

3.3.8 "Szárazság stressz" hatása a különböző kukorica hibridekre, PEG

felhasználásával miniPET kamerával követve

Ugyanazokat a kukorica hibrideket teszteltem, amelyeket az előző részben, 3.3.5 fejezet, leírt ideális körülmények között használtam. PEG oldatot használtam a vízpotenciál csökkentésére a tápoldatban, hogy vízhiányt idézzek elő. A cél az volt, hogy különbséget mutassak ki a felvételi idő vagy a felvett mennyiség között. A kísérletekhez három különböző PEG koncentrációt használtam a tápoldatban: 5-10-20 %m/m.

Az 5 %m/m PEG mellett készült eredmények nem meggyőzőek. Különböző mintákból kapott eredmények nagyon fluktuálnak, nem sikerült egyértelmű eltéréseket kimutatni a két hibrid között.

A másik véglet a 20 %m/m PEG tartalmú tápoldat alkalmazása esetén a kísérletek közben sok egyed elszáradt, túl nagymértékű volt a szárazság a palántáknak. Az elkészült PET felvételeken semmi nem látható egyik esetben sem. Ez a körülmény sem alkalmazható különbségek kimutatására két hibrid között.

A 10 %m/m PEG tartalmú tápoldattal készült PET eredményeket a 36. ábra és a 37. ábra mutatja be 0,5 órás bontásokban. Az aktivitás első megjelenése mind az 1., mind a 2. típus esetében 4 óra elteltével történt. 7 óra elteltével az aktivitás elkezdett felhalmozódni az 1. típusú kukorica szárában. A 2. típusban az aktivitása ugyanazon a helyen marad, mint korábban. 12 óra elteltével még a szár teteje is láthatóvá vált, és az egész

79

szár ragyogott az 1-es típus esetén, míg a 2-es típusnál az aktivitása még mindig a szár elején volt. Ebben az esetben minden palánta túlélte a kísérletet. A különbség jól látható, hogy míg a 2-es típus ugyan él, viszont a tápanyag felvétele nagyon lassú ebben az esetben, míg az 1-es típus, mintegy 6 órás lemaradásban van a normál körülmények között mért teljesítményéhez képest, 30. ábra, akárcsak a 2-es típus, 31. ábra.

A vizsgált két hibrid között már optimális körülmények között, 3.3.5 fejezet, is megfigyelhető volt a különbség a mangán(II)-felvételi időben és a felvett mennyiségben is. A PEG alkalmazása után az eltérések még szignifikánsabban látszanak a PET képeken, ahol a két hibrid esetében azonos mértékű elmaradást tapasztaltam. Ez jól jelzi a PEG hatását, aminek segítségével a jobban teljesítő hibrid azonosítása könnyebben kivitelezhető.



36. ábra az 1-es típusú kukorica palánta mangán(II) felvételéről készült PET képek, a tápoldatban 10% PEG tartalom



37. ábra az 2-es típusú kukorica palánta mangán(II) felvételéről készült PET képek, a tápoldatban 10% PEG tartalom

3.3.9 "Szárazság stressz" hatása a különböző kukorica hibridekre, PEG felhasználásával gamma spektrométerrel követve

A korábbi fejezetben bemutatott gamma spektrometriás méréseket a miniPET által szolgáltatott információ kiegészítésére, illetve megerősítésére itt is elvégeztem. Hasonlóan a korábban végzett kísérleteknél itt is 3 időpontot használtam (2-6-10 óra), ami alapján a mangán(II) halmozásában különbséget tudok tenni a két hibrid között.

A PET képek alapján nem tudtam egyértelmű eltéréseket kimutatni a két hibrid között 5% PEG tartalom mellett. A gamma spektrometriás eredmények alapján is nagyon hasonló a két minta 2 és 6 óránál. 10 óránál már jelentkeznek eltérések (38. ábra). Az 1-es hibrid leveleiben megindul az aktivitás felhalmozása, feltehetően emiatt csökken a szár és a mezokotil aktivitása. Az ideális állapothoz képest jól látható visszaesés van a levelek aktivitásában 6 óránál, ami 10 órára kiegyenlítődik a legöregebb (levél #4) és a középső levél (levél #5) között, viszont a legfiatalabb (levél #6) levél 10%-al elmarad.

A 2-es hibrid leveleinél is látható aktivitás növekedés tapasztalható, viszont sokkal kisebb mértékben. Az eredmények alapján a szár és a mezokotil radiomangán(II) tartalma tovább növekszik. A 2-es hibrid az alapállapothoz hasonlóan viselkedik 2 és 6 óránál, de 10 óránál kis mértékben visszaszorul a levelek mangán(II) tartalma, körülbelül 5%-al.



38. ábra két különböző kukorica hibrid mangán(II) felvétele gamma spektrométerrel mérve, 5 %m/m PEG tartalmú tápoldatban. Balra 1-es, jobbra a 2-es hibrid.

10%-os PEG tartalom mellett a PET képekhez hasonlóan veszi fel a két hibrid a mangán(II)-t, 6 órás lemaradással. A gamma spektrometriás eredményeken a 3 időpont miatt nem jelenthető ki egyértelműen a 6 órás lemaradás (39 ábra).

Az 1-es hibrid esetében már 6 óránál látható, hogy a legnagyobb levélben (levél #5) elkezd gyűlni az aktivitás. A 10 órás pontban az összes levél aktivitás tartalma elkezd növekedni.

A 2-es hibrid esetében a szár mangán(II) tartalma is elmarad az ideális és az 5%-os mintákétól, 6 óránál és 10 óránál is csak a szár és a mezokotil tartalmaz számottevő aktivitást.



39 ábra két különböző kukorica hibrid mangán(II) felvétele gamma spektrométerrel mérve, 10 %m/m PEG tartalmú tápoldatban. Balra 1-es, jobbra a 2-es hibrid.



40 ábra két különböző kukorica hibrid mangán(II) felvétele gamma spektrométerrel mérve, 20 %m/m PEG tartalmú tápoldatban. Balra 1-es, jobbra a 2-es hibrid.

20%-os PEG tartalom mellett a PET képeken nem látszott semmi. A gamma spektrometriás eredmények alapján látható, hogy miért (40 ábra). A 2-es hibridben az aktivitás csak néhány %-a jutott el a mezoktilba és alig érte el az 5%-ot 10 óra alatt. Sem a szárban, sem a levelekben nem sikerült értékelhető mennyiségű aktivitást mérni.

A PET képeken ugyan az 1-es hibrid esetében sem sikerült megjeleníteni semmit, viszont a gamma eredmények alapján közel akkora a szár halmozása 6 óránál, mint ideális esetben 2 óránál. 10 óra alatt láthatóan 2 levélben (levél #4 és #5) is megjelenik a mangán(II). Ezek alapján az 1-es hibrid még ilyen magas PEG tatalom, azaz ilyen nagymértékű szárazság esetén is képes lassan és kis mennyiségben a mikrotápanyag továbbítására. Az eredményeket 0%-os PEG koncentrációval összehasonlítva arra a következtetésre jutottam, hogy a levelek mangán(II)-felvételében 2 óra elteltével nincs szignifikáns különbség a két kukoricatípus között, PEG tartalomtól függetlenül, ahogy 0 %-os PEG tartalom mellett történt. Azonban 6 és 10 óra múlva a 0 %-os PEG tartalom mellett mért 15 % és 22 %-os radiomangán(II) halmozási különbségek a levelekben csökkennek a PEG koncentráció emelésével, egészen 0,5 % és 2,8 %-ig. Amint azt a PET és a gamma mérések is bizonyították, a 2 -es típusú kukorica leveleiben nincs radiomangán(II) 10% vagy magasabb PEG tartalom esetén.

A miniPET kamera segítségével sikerült megkülönböztetni a két hibridet a 10%-os PEG tatalom mellett. A gamma spektrométeres mérések segítségével sikerült különbségeket kimérni a két hibrid között 10 óránál mind a három PEG tartalom mellett.

3.3.10 Mangán(II) felvétel és keringés vizsgálata ⁵²Mn-vel növényekben gamma spektrométerrel különböző PEG tartalom mellett, PEG tartalmú és normál tápoldatban nevelt minták összehasonlítása

A PEG stressz hatását a hagyományos módszerek esetén hosszú távon vizsgálják és már a növények nevelése során szokás a megfelelő PEG tartalmat beállítani a tápoldatokban. A kísérleteim során előnyben részesítettem a normál (PEG-t nem tartalmazó) körülmények közötti nevelést a növények számára, mivel így könnyebb volt kiválasztani a felhasználni kívánt alanyokat és egyenletesebben fejlődtek az egyedek. Az 1-es hibriddel annak érdekében végeztem a vizsgálatokat, hogy kimutassam, milyen különbségek lehetnek a hirtelen stressz és hosszú távú szárazság hatására.

A mérésekből származó eredmények az alábbi ábrán láthatóak, 41. ábra. Az összehasonlítást az normális állapothoz képest is elvégeztem. Mind a két esetben látható PEG hatása a növényekre.



41. ábra 1-es típusú kukorica hibrid mangán(II) felvétele gamma spektrométerrel mérve normális tápoldaton (PEG-et nem tartalmazó) nevelt és vizsgált (balra), 10% PEG tartalmú tápoldatban nevelt és vizsgált (középen), normális tápoldatban nevelt, 10% PEG tartalmú tápoldatban vizsgált (jobbra)

A korábbi fejezetben, 3.3.9 fejezet, tapasztaltak itt is láthatók. 2 óránál nem látszik jelentős felvétel egyik esetben sem. 6 óránál a PEG-en nevelt példányok közelebbi hasonlóságokat mutatnak a kontroll növényekkel, mint a mérés közben PEG-el kezeltek. A levelekben hamarabb megjelenik a mangán(II) a PEG-en neveltekben, de jól látható, hogy 10%-al kevesebb a "levél #6"-os esetében és 5%-al kevesebb a "levél #5"-ös esetén. Mind a két PEG-esnél a gyökerekben több aktivitás marad, mint normál esetben.

13%-kal kevesebb marad a gyökérben a PEG-neveltek, mint a csak kísérlet közben PEG-et kapott egyedeknél.

10 óránál csökken a különbség a két PEG-el kezelt sorozat között. Normál esetben látszik, hogy a gyökérben lévő mangán(II) tartalom jelentősen lecsökkent, 30% alá, míg a másik két esetben 50% körül mozog ez az érték. Normál esetben mind a 3 levél jelentős mangán(II) tartalomra tett szert. A két PEG-es sorozat között a frissen PEG-et kapott mintáknál a legöregebb levél (levél #4) 1% alatt tartalmazott mangán(II)-t, míg a PEG-en nevelt esetén elérte az 5%-ot. A legfiatalabb levél (levél #6) azonos mennyiséget vett fel mind a két esetben, míg a legnagyobb levélnél (levél #5) 5%-al több mangán(II)-t vettek fel a PEG-en neveltek alanyok.

Az eredmények alapján kijelenthető, hogy az eltérés a normálhoz képest mind a két esetben látszik. Ugyanakkor a korai szakaszban (6 óránál) a PEG-en nevelt példányok, feltehetőleg mert hozzá voltak szokva a körülményekhez, jobb mangán(II) keringést mutatnak, mint azok, amelyek újonnan kerültek a helyzetbe, viszont ez a különbség kiegyenlítődni látszik az idő előrehaladtával.

3.3.11 Ideálistól eltérő hőmérséklet hatásának vizsgálata a kukorica palánták mangán(II) felvételére gamma spektrométerrel

Mint minden növény esetében a kukoricánál is fontos a megfelelő hőmérséklet az optimális fejlődéshez. A nevelés során alkalmazott 25 °Ctól (ideális hőmérséklet) eltérő hőmérsékletek hatását vizsgáltam a kukorica palánták mangán(II) felvételére. A kísérletekhez a korábban is használt 2-es hibridet alkalmaztam, összehasonlításhoz a következő

90

fejezetben bemutatott 43. ábra baloldali görbéjét használtam (normál fény). Az alacsonyabb 17 °C-ot és a magasabb 35 °C-ot összehasonlítva látszik (42. ábra), hogy 2 óránál egyik esetben sem jutott mangán(II) a levelekbe. A szárak esetében a 17 °C-os minták hasonló felvételt mutatnak, mint ideális esetben, még 35 °C-on már 2 óránál 8% aktivitás van a szárban. 6 óránál a 17 °C-os minták szárában és a levelekben is hasonló mennyiség van, mint ideális esetben, csupán a legnagyobb levél (levél #5) esetében tapasztalható 2% többlet. 35 °C-on a szárban 10%-al több aktivitás van mint a 17 °C-osban vagy az ideális esetben. A levelek esetében a legöregebb levél (levél #4) itt sem kap mangán(II)t, míg a másik két levél 6-6% aktivitást tartamaz, körülbelül 3%-al többet mint ideális esetben. 10 óránál 17 °C-on a szárban 18% aktivitás van, ami 6%-al kevesebb mint ideális esetben, viszont közel azonos mint a 35 °C-os mintákban. A levelek ebben az esetben is az ideálishoz hasonló halmozást mutatnak. 35 °C-on 10 óránál egy visszaesés mutatható ki a szárban lévő mennyiségben, ami magyarázható azzal, hogy a levelekben nőtt a mangán(II) tartalom és a gyökérről kapott eredményeken látszik, hogy mintha nem továbbított volna több mangán(II)-t a szárba. A 42. ábra látszik, hogy a gyökérben a szokásos folyamatos csökkenés helyett egy emelkedés látható. Ennél a pontnál már nem tartalmaznak a levelek több aktivitást, mint ideális esetben. A 6-os és 5-ös levélben hasonló aktivitás van, mint a 17 °C-on és ideális esetben, viszont a 4-es levélben szinte nem jelent meg mangán(II).



42. ábra 2-es típusú kukorica hibrid mangán(II) felvétele különböző hőmérsékleteken, balra 17 fokon, jobbra 35 fokon

A mért eredmények alapján enyhe 8 °C-os csökkenés nem okoz jelentős változást a palánták mangán(II) felvételében. A 10 °C-os hőmérséklet emelés esetében a korai szakaszban gyorsabb mangán(II) felvétel figyelhető meg, azonban 10 óra elteltével inkább a többlet hőmérséklet negatív hatása látható.

3.3.12 Kukorica palánták mangán(II) felvételének vizsgálata éjszakai szakaszban gamma spektrométerrel

A kukorica palánták mangán(II) felvételének eltérését szeretném megfigyelni a nappali és az éjszaki szakasz között a 2-es típusú hibriddel. A kapott eredményeken látható (43. ábra), hogy a korai 2 órás szakaszban hasonló a felvett mangán(II) eloszlása mind a két esetben. A későbbi 6 órás szakaszban már jelentős különbségek figyelhetőek meg főleg a levelekben. Jól látható, hogy az 5-ös és a 6-os levelekben az éjszakai mintáknál szinte nincs mangán(II), míg a nappali mintákban 12% aktivitás található. A 8 órás éjszakai mintákban látható, hogy a legöregebb 4-es levél mangán(II) tartalma emelkedik a legjobban, a nappal kezdetéhez közeledve a többi levél mangán(II) tartalma is emelkedik. 10 órás szakaszban 4-es levél mangán(II) tartalma nem emelkedik tovább, míg a másik két levélé igen. Az 5-ös 6%-al, a 6-os levél 4%-al tartalmaz több mangán(II)-t mint 2 órával korábban. A nappali szakaszhoz képest 5%-al kevesebb mangán(II) van az 5-ös és 6-os levelekben.

A kapott eredmények alapján a nappali és az éjszakai mangán(II) felvétel a kukorica palántákban jól láthatóan eltér. A növények éjszaka is felveszik a mangán(II)-t, viszont fény hiányában nem továbbítják azt a levelekhez.



43. ábra 2-es típusú kukorica hibrid mangán(II) felvétele éjszakai szakaszban összehasonlítva a nappali szakasszal

3.3.13 Csökkentett fényintenzitás hatásának vizsgálata a kukorica palántákra gamma spektrométerrel

A teljes sötétségnek jól látható hatása van a növények mangán(II) felvételére, a mangán(II) eloszlására a növényekben, mint a korábbi fejezetben bemutattam. A növények növekedése során előfordul. hogy nem kapnak ideális fényt, ezért a kísérletek során a csökkentett fény hatását is vizsgáltam a mangán(II)-felvételre.

A kapott eredményekből készült ábrán látható (44. ábra), hogy 2 óránál itt sem mérhető különbség. A 6 órás szakaszban is hasonló a mangán(II) eloszlása a növényekben. A 10 órás szakaszban a 6-os és az 5-ös levelek esetében nem mérhető jelentős különbség. A 4-es levelek esetében figyelhető meg némi különbség, 5%.



44. ábra 2-es típusú kukorica hibrid mangán(II) felvétele csökkentett fény intenzitás mellett

A kapott eredmények alapján nem jelenthető ki egyértelműen, hogy jól definiálható különbség lenne a normál és a csökkentett fényviszonyú minták között.

4 Összegzés

Munkám első részeként egy olyan módszert dolgoztam ki, amellyel megbízhatóan és viszonylag vastag gadolínium céltárgyakat lehet előállítani, kiváló tapadással az aluminium hátlapokon. Ehhez elektrolízist használtam. Az aluminium hátlap volt egyben az katód is, amiből a besugárzások során nem keletkeznek zavaró radioizotópok, amelyek nehezítik a spektrumok kiértékelését. Sikerült kellően stabil 2,5 mikronos vastagságú céltárgyakat előállítanom, amelyek a mechanikai teszteket is kibírták (ejtés, hőkezelés, hajlítás). Több egyedi célpontot aktiváltam protonnyalábbal és megtaláltam a minták spektrumaiban a ¹⁵⁵Tb és ¹⁵⁶Tb gamma vonalait.

A kémiai kísérletek során alkalmazott Gd₂O₃-ból készült préselt tabletták 175-350 mg-osak voltak. Kidolgoztam egy új módszert az orvosilag fontos radioaktív terbium(III) elválasztására több száz milligramm gadolínium(III) céltárgyból analitikai és félpreparatív méretű oszlopokon. Az elválasztási technikák hatékonysága 85, illetve 93% volt radioanalitikai módszerekkel mérve.

Új módszert dolgoztam ki, a terbium(III) megtisztítására neutronokkal történő előállítása során megjelenő diszprózium(III) és gadolínium(III) szennyezőktől. Ehhez Gd₂O₃ és Tb₂O₃ keveréket sugároztam be ciklotronnal. Az eljárás során ¹⁵⁹Gd, ¹⁵⁶Tb és ¹⁵⁹Dy radioiozotópok kelekeztek melyek segítségével imitálni tudtam a neutronos besugárzás során keletkező 3 elemet. Az elválasztási módszer félpreparatív méretű oszlopon, 98%-os hatákonysággal működött.

Az előbb kidolgozott módszer egy másik lehetséges alkalmazása a radioterbium előállítására, ha nem közvetlenül a terbiumot állítom elő,

97
hanem annak anyaelemét, a radiodiszpróziumot. A kidolgozott módszer alkalmas arra, hogy a terbium besugárzása során keletkező diszprózium 34%-át már elsőre terbium mentesen megkapjam. Mivel a teljes diszprózium(III) frakcióban is csak elenyésző mennyiségű terbium(III) található, egy második tisztítási folyamat során teljesen az eltüntethető.

Optimalizáltam a ⁵²Mn²⁺ 200 mg króm(III) mátrixtól való elválasztást a saját rendszeremre, amivel egy elválasztást követően kevesebb mint 6 ppm króm(III) szennyező marad a mangán(II) mellett.

MiniPET vizsgálatokat használtam kétféle kukoricahibrid nyomelem felvétele és szállítása közötti különbség mérésére. Ebből a célból egy teljes gyűrűs miniPET kamerát használtam és a kukorica növények méretét úgy választottam meg, hogy illeszkedjenek a kameragyűrűbe. Ez volt az oka annak, hogy kicsi növényi palántákat alkalmaztam, 3 levéllel. A PET technikát gamma spektroszkópiával párosítottam, hogy meghatározott időpontokban pontosan megmérjem a növényi részekben található radiomangán mennyiségét.

A módszer kidolgozása során meghatároztam a kísérletekhez legoptimálisabb oldattérfogatot, aminek 15 ml tápoldatot választottam 2,5 MBq aktivitással 25 ml-es főzőpohárban. Igazoltam, hogy a kamera adott esetben képes a levelek megjelenítésére. A minták pozicionálása érdekében feltérképeztem a kamera látorterét, aminek a maximális átmérője 10 cm-nek bizonyult, ebből 9 cm különül jól el a látótér széli zajtól. A kis oldatméret miatt fontos volt megmérni a tápoldatban, hogy a kísérlet maximális időtartama alatt (12 óra) a pH mennyit változik. Az eredmények alapján látszott, hogy nem változik az oldat pH-ja olyan mértékben, hogy cserére szoruljon a mérés ideje, 12 óra alatt.

Először a radiomangán(II) transzportot követtem végig két hibridben, mind miniPET, mind pedig gamma spektrometriás technikával. 12 órán keresztül készítettem felvételeket a PET kamerával. A palánta szára volt az a rész, amelyet elsősorban láttam, mert a gyökér és a mezokotil fő része a radioaktív oldatban volt, kívül a kamera látóterén. A mezokotil soha nem jelent meg egyik képen sem, és a levelek csak részben váltak láthatóvá néha, valószínűleg a szárban és a főzőpohárban lévő radioaktivitás okozta magas háttér miatt. A PET képeken előszőr 1 óra és 2 óra elteltével jelenik meg az aktivitás, amikor a szár alsó része egy pontként látszik az 1 -es és a 2 -es típusnál. Az idő előrehaladtával 3,5 óra után az 1 -es típusnál és 6 óra után a 2 -es típusnál a teljes szár láthatóvá válik. Ezek alapján az 1-es típusnál gyorsabb a felvétel. 12 óra elteltével a két típus szára teljesen látható, de az 1-es típus esetén nagyobb intenzitással.

A HPGe gamma spektrométer sokkal kisebb mennyiségű radiomangánt képes mérni, így látható, hogy a mangán(II) elérte a növények minden részét 6 óra alatt. A felhalmozódási értékek (A %) azt mutatják, hogy a levelek mangán tartalma 6 óránál 15%-al, míg 10 óránál 22%-al több az 1- es típusnál a 2-eshez képest. Miután összehasonlítottam a két kukoricafajtát ideális körülmények között (PEG stressz nélkül), arra a következtetésre jutottam, hogy az 1-es típusú hibrid mind a felszívódás sebességében, mind arányában felülmúlja a 2-es típust.

Annak igazolására, hogy a mangán(II) mozgása nem egyezik meg a víz mozgásával a növényben, ¹⁸F⁻ ionnal végeztem el a korábbi mangános vizsgálatokat. A ¹⁸F⁻ jelenlétét a levelekben már 1 óra után sikerült kimutatni a PET kamerával, míg a gamma spektrométeres mérések alapján a mangán(II) még 2 óránál sem éri el a leveleket. Ezek alapján kijelenthető,

hogy a mangán(II)-vel elért eredmények nem a víz mozgásából származnak.

A PEG-vel végzett "szárazság stressz" tolerancia vizsgálatok hasonló eredményeket adtak, mint a korábbi PEG mentes vizsgálatok. A tápoldatban lévő PEG minden koncentrációjában az 1-es típusú hibrid felülmúlja a 2-es típust. A magas (10 % feletti) PEG tartalom esetén kis mértékű felvétel figyelhető meg az 1-es típusnál a levelekben is, míg a 2es típusban a 10 % -os PEG -nél már egyáltalán nincs felvétel a levelekben. A PEG hosszú távú hatása is kimutatható a mangán(II)-felvételen keresztül. Az 1-es hibridnél a 10% PEG tápoldaton nevelt növények a korai szakaszban jobban teljesítettek a mangán(II)-felvételben mint az PEG nélkül neveltek. 10 óránál már ez a különbség kiegyenlítődik. Mind a két esetben jól látható eltérések vannak a mangán(II) eloszlásában és mennyiségében a PEG nélkül vizsgált példányokhoz képest.

A környezeti változások, mint a hőmérséklet és a fény csökkenés vagy növekedés hatása is megfigyelhető a mangán(II)-felvételen keresztül. A nevelés során alkalmazott 25 °C-os hőmérséklettől alacsonyabb, 17 °C-on vizsgált példányoknál kevesebb mangán(II) észlelhető, míg a magasabbnál, 35 °C-on 6 óránál kismértékű többlet felvétel figyelhető meg a levelekben, mint normál esetben. 10 óránál a levelekben lévő mangán mennyisége hasonló, mint a 17 °C-os mintáknál. Ezek alapján a túlzottan magas hőmérséklet sem ideális hosszú távon a palántáknak.

Éjszaka a mangán(II) felvétel lassabb, mint a nappali szakaszban és az eredmények alapján a legöregebb levél kapta a legtöbb mangán(II)-t a levelek közül. A nappali szakaszhoz közeledve megnő a szár és a többi levél mangán(II) tartalma is. A 10 órás mérési pontban már 2 óra fényt kapott a növény és a szárban, illetve a gyökérben lévő aktivitás halmozás

100

hasonló, mint a nappali szakaszban 10 óránál, míg a két fiatalabb (levél #5 és #6) levélben mért aktivitás halmozás hasonló szinten van, mint a nappali esetben a 6 órás állapotban.

A csökkentett fény hatására nem jelentkezik olyan szignifikáns különbség a normál állapothoz képest, mint más vizsgálatoknál, de itt is megfigyelhető a levelek közötti mangán(II) eloszlásban némi különbség. Ezek alapján a miniPET kamerával és gamma spektrométeres technikával is lehetőség van növények fenotipizálására.

5 Summary

Radioactive isotopes and their radiation play important roles in many areas of life. Despite their known dangers, they have now become indispensable in some parts of medical examinations and therapies, as well as in industry. As a result, the number of related researches is constantly increasing. Particle accelerators and nuclear reactors play a prominent role in this popularity, as they can be used to achieve a wide variety of radioisotopes. In the course of my study, I worked with radioisotopes produced with a cyclotron particle accelerator, from the preparation of the targets required for their production through their purification to their application.

5.1 Gadolinium Targeting

The radioisotopes of terbium are of great importance as they include the species required for diagnosis as well as therapy. They are cumbersome to produce because they require enriched gadolinium targets and high-energy cyclotron irradiation required for the therapeutic ¹⁴⁹Tb production. In the first part of my work, I developed a method to reliably and relatively thick

gadolinium targets with excellent adhesion to aluminium backings. Electrolysis was used for this. The aluminium backplate was also the cathode, in which no interfering radioisotopes are generated during irradiation, which would make it difficult to evaluate the gamma spectrum. Sufficiently stable 2.5 micron thick targets that also withstood mechanical tests (drop, heat treatment, bending) were produced. Several unique targets were irradiated with proton beams and the ¹⁵⁵Tb and ¹⁵⁶Tb lines were found in the sample's gamma spectrum.

5.2 Gadolinium(III), Terbium(III), Dysprosium(III) separation

Radioisotopes produced during irradiation must be purified from the irradiated target material, which is already present as a contaminant at this stage. The target material is in most cases a very expensive isotopically enriched material, so the method must be suitable for recovering the target at the end of the process.

In the literatures electrolyzed targets required a small amount of material, a few milligrams during the separation. However, the few micron-thick target I made from gadolinium is only suitable for cross-section measurements, it cannot be made thicker by electrolysis. Therefore, a different method had to be used for isotope production for medical purposes, where a much thicker target is required to produce high activities. For this purpose I used pressed tablets. These are requires hundreds of milligrams to a few grams of material. Compressed tablets were used for the later experiments instead of the previous electrolyzed targets. Large columns are used in the literature to separate the produced radioisotopes from a high amount of target matrix. I replaced these with smaller columns that allowed me to work faster and more cost-effectively while maintaining efficiency. I have developed a method for the separation of medically important radioactive terbium(III) from hundreds of milligrams of gadolinium(III) on an analytical and semi-preparative column size. The efficiency of the separation techniques was 85% and 93%, respectively, measured by radioanalytical methods.

One of the therapeutic terbium (¹⁶¹Tb) is produced by neutrons from gadolinium. When the gadolinium is irradiated dysprosium is also formed during the process. To purify the terbium formed, a Gd³⁺ / Tb³⁺ mixture was irradiated with a cyclotron as a probe. During the process, ¹⁵⁹Gd, ¹⁵⁶Tb, and ¹⁵⁹Dy radioisotopes were obtained what simulated the 3 radioisotopes formed during the neutron irradiation. An efficient separation method was developed on a semi-preparative size column to obtain dysprosium(III)- and gadolinium(III)-free radioactive terbium(III) in one process, measured by radioanalytical methods with a separation yield of 98%.

Another possible application of the previously developed method is the production of radioterbium through its parent element, the radiodysprosium. The developed method is suitable for obtaining 34% of the dysprosium pure, generated during the irradiation of terbium. Since only a negligible amount of terbium was found in the total dysprosium fraction, it could be completely removed in a second purification process.

5.3 ⁵²Mn separation

There are some great opportunities in manganese-52 because it has a low energy positron which makes it suitable for PET applications. The simple chemistry of the manganese(II) is also a huge advantage. But unfortunately, it has 3 high-energy gamma lines (744, 935, 1434 keV) which make its dosimetry problematic. May this be the reason why it is not spread more. There are many areas where it can be used, so I tried to use it for plant phenotyping. For this case, pure manganese was used. At first, I needed to purify it from the chromium matrix. After several attempts, a method was optimized for the separation with my system. Using anion exchange resin and hydrochloric acid as eluent, it was possible to remove the bulk chromium(III), leaving less than 6 ppm after one separation.

5.4 Plant experiments

Cereals and other agriculturally important crops are essential for humanity. With increasing demand, a decrease in production is not allowed, and as a result, there is a great need to improve the resistance of plants.

The full-ring miniPET device can distinguish between different types of maize hybrids concerning the uptake of manganese(II) (and hopefully other trace elements) under certain conditions. This method is suitable for visualization but may be supplemented by quantitative gamma measurements if necessary for quantification. Both miniPET and gamma assays are relatively fast and low cost, which may be an alternative method for phenotyping plants.

In my work, I used MiniPET assays to capture the trace element uptake and transport difference between two types of maize hybrids. For this purpose, I used a full-ring miniPET camera and selected the size of the corn plants to fit into the camera ring. This was the reason why I used small plant seedlings with 3 leaves. The PET camera displays different intensities of radioactivity in different colors. I paired the PET technique with gamma spectroscopy to accurately measure the amount of radiomanganese(II) in plant parts at specific time points.

During the development of the method, I determined the most optimal volume of solution for the experiments, for which I chose 15 ml of medium with 2.5 MBq activity in a 25 ml beaker. I verified that the camera is capable of displaying the leaves. To position the samples, I mapped the field of view of the camera, which proved to have a maximum diameter of 10 cm, but I reduced the useful area to 9 cm which is well separated from the noise at the edge of the field of view. Due to the small solution size, it was important to measure the change in pH in the medium during the experiment, which showed that the pH of the solution did not change to such an extent during the measurement time, 12 hours, that needed to be replaced for fresh.

I first followed radiomanganese(II) transport through two hybrids using the two techniques. I took pictures with the PET camera for 12 hours. The stem of the seedling was the part I saw mainly because the main part of the root and mesocotyl was in the radioactive solution, outside the field of view of the camera. The mesocotyl never appeared in any of the images, and the leaves only became partially visible sometimes, probably due to the high background caused by radioactivity in the stem and beaker. In the images, it first appears after 1 hour and 2 hours, when the lower part of the stem is a point for types 1 and 2. Over time, after 3.5 hours for type 1 and after 6 hours for type 2, the entire stem becomes visible. Based on these, Type 1 provides faster uptake. After 12 hours, the stems of the two types were fully visible, but with a higher intensity in the case of type 1.

The HPGe gamma spectrometer can measure much smaller amounts of radiomanganese, so it can be seen that the manganese(II) has reached all parts of the plants within 6 hours. The accumulation values (A%) show that the manganese(II) content of the leaves is 15% higher at 6 hours and

22% higher at 10 hours compared to type 2. After comparing the two maize cultivars under ideal conditions (without PEG stress), I concluded that the type 1 hybrid outperformed type 2 in both the rate and proportion of absorption.

To verify that the movement of manganese(II) does not match the movement of water in the plant, I performed the previous manganese(II) studies with an ¹⁸F ion. The presence of ¹⁸F in the leaves was detected with the PET camera after only 1 hour, while according to gamma spectrometric measurements, the manganese(II) did not reach the leaves even at 2 hours. Based on these, it can be stated that the results obtained with manganese(II) are not only due to the movement of water.

The "drought stress" tolerance study with PEG gave similar results as previous PEG-free studies. At all concentrations of PEG in the medium, the type 1 hybrid outperforms the type 2. With a high PEG content (above 10%), a small amount of uptake was also observed in type 1 leaves, while in type 2, 10% PEG has no uptake in the leaves at all.

The long-term effects of PEG can also be demonstrated through manganese(II) uptake with type 1 hybrid. Plants grown on a 10% PEG medium performed better in the early stage of manganese(II) uptake than those grown without PEG. After 10 hours this difference was evened out. In both cases, there are clear differences in the distribution and amount of manganese(II) compared to the specimens without PEG.

The effects of environmental changes such as temperature and light decrease or increase can also be observed through manganese(II) uptake. In the case of specimens examined at 17 °C, below the 25 °C temperature used during the plant growing, a decrease was observed, while at higher temperatures, at 35 °C, a slight excess was observed in the leaves than in

the normal case. After 10 hours, the amount of manganese in the leaves was similar to that in the 17 °C samples. Based on these, excessively high temperatures are not ideal for seedlings in the long run.

At night, manganese(II) uptake was slower than in the daytime phase, and based on the results, the oldest leaf received the most. Approaching the daytime stage, the manganese content of the stem and other leaves also increases. After 10 hours, the accumulation of activity in the stem and root was similar to that in the daytime, while the accumulation of activity in the two younger leaves (leaf # 5 and # 6) was at a similar level. as in the daytime case in the 6-hour state.

Reduced light does not show as significant a difference from normal as in other studies, but there is some difference in the distribution of manganese(II) between the leaves.

Based on these results, it is possible to phenotype plants with the miniPET camera and gamma spectrometer technique.

6 Irodalomjegyzék

- P. Radvanyi and J. Villain, "The discovery of radioactivity," *Comptes Rendus Phys.*, vol. 18, no. 9–10, pp. 544–550, 2017, doi: 10.1016/j.crhy.2017.10.008.
- [2] A. B. Garrett, "Radioactive tracers: George de Hevesy," *J. Chem. Educ.*, vol. 40, no. 1, pp. 36–37, 1963, doi: 10.1021/ed040p36.
- [3] T. E. of E. Britannica, "Radioactive Isotope.," *Encyclopedia Britannica*, 2020. [Online]. Available: https://www.britannica.com/science/radioactive-isotope.
- [4] E. Salmanoglu, S. Kim, and M. L. Thakur, "Currently Available Radiopharmaceuticals for Imaging Infection and the Holy Grail," *Semin. Nucl. Med.*, vol. 48, no. 2, pp. 86–99, Mar. 2018, doi: 10.1053/j.semnuclmed.2017.10.003.
- [5] L. Zhang *et al.*, "Delivery of therapeutic radioisotopes using nanoparticle platforms: Potential benefit in systemic radiation

therapy," *Nanotechnol. Sci. Appl.*, vol. 3, no. 1, pp. 159–170, 2010, doi: 10.2147/NSA.S7462.

- S. M. Qaim, "Use of cyclotrons in medicine," *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 71, no. 3–4, pp. 917–926, Oct. 2004, doi: 10.1016/j.radphyschem.2004.04.124.
- M. A. Synowiecki, L. R. Perk, and J. F. W. Nijsen, "Production of novel diagnostic radionuclides in small medical cyclotrons," *EJNMMI Radiopharm. Chem.*, vol. 3, no. 1, p. 3, Dec. 2018, doi: 10.1186/s41181-018-0038-z.
- [8] K. Buga *et al.*, *Nukleáris medicina*. Medicina Könyvkiadó Zrt., 2010.
- [9] C. Müller *et al.*, "A unique matched quadruplet of terbium radioisotopes for PET and SPECT and for α- and β--radionuclide therapy: An in vivo proof-of-concept study with a new receptortargeted folate derivative," *J. Nucl. Med.*, vol. 53, no. 12, pp. 1951–1959, 2012, doi: 10.2967/jnumed.112.107540.
- [10] I. A. E. Agency, "Charged particle cross-section database for medical radioisotope production: diagnostic radioisotopes and monitor reactions," 2001.
- [11] A. M. Johnston and R. Dowbenko, "Essential Elements in Corn," in Advanced Silage Corn Management, Shabtai Bittman and C. Grant Kowalenko., Ed. Pacific Field Corn Association, 2004.
- [12] M. Nozulaidi, M. Nurlnani, M. Khairi, and S. Jahan, "Production of Corn; Effects of Manganese Application on Plant Parameters," *Open Access J. Agric. Res.*, vol. 1, no. 2, 2016, doi: 10.23880/oajar-16000109.
- [13] J. Kónya and N. M. Nagy, Izotópia jegyzet a magkémia és radiokémia oktatáshoz 1. rész. DEENK Kossuth Egyetemi Kiadó, 2007.
- [14] P. J. Bryant, "A brief history and review of accelerators," Cern Eur. Organ. Nucl. Res., pp. 1–1, 1994.
- [15] C. Sutton, "Particle Accelerator," *Encyclopedia Britannica*, 2020.[Online]. Available:

https://www.britannica.com/technology/particle-accelerator.

- [16] O. Barbalat, "Applications of particle accelerators," 1994.
- [17] I. Angeli et al., Atommagfizika I. Debreceni Egyetem Kiadó, 2009.
- [18] M. Seidel, "Cyclotrons for high-intensity beams," Cern Accel. Sch. High Power Hadron Mach. CAS 2011 - Proc., no. 2, pp. 17–32, 2013.
- [19] S. Braccini, "Compact medical cyclotrons and their use for

radioisotope production and multi-disciplinary research," *CYC* 2016 - Proc. 21st Int. Conf. Cyclotrons their Appl., pp. 229–234, 2016.

- M. Sajjad and R. M. Lambrecht, "Cyclotron targetry for medical radioisotope production," *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B*, vol. 40–41, no. PART 2, pp. 1100–1104, 1989, doi: 10.1016/0168-583X(89)90548-X.
- [21] F. Ditrói, F. Tárkányi, and S. Takács, "GAS, LIQUID AND MOLTEN TARGETS AT CYCLOTRON BEAMS: TARGET SYSTEMS AND RELATED NUCLEAR DATABASE," 2006.
- [22] World Nuclear Association, "Radioisotopes in industry." [Online]. Available: https://world-nuclear.org/information-library/nonpower-nuclear-applications/radioisotopes-research/radioisotopesin-industry.aspx.
- [23] A. Ku, V. J. Facca, Z. Cai, and R. M. Reilly, "Auger electrons for cancer therapy – a review," *EJNMMI Radiopharm. Chem.*, vol. 4, no. 1, 2019, doi: 10.1186/s41181-019-0075-2.
- [24] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Cyclotron produced radionuclides: operation and maintenance of gas and liquid targets (Radioisotopes and Radiopharmaceuticals Series No. 4), no. 4. 2012.
- [25] S. Haroush, D. Moreno, I. Silverman, A. Turgeman, R. Shneck, and Y. Gelbstein, "The mechanical behavior of HAVAR foils using the small punch technique," *Materials (Basel)*., vol. 10, no. 5, 2017, doi: 10.3390/ma10050491.
- [26] W. Z. Gelbart and N. R. Stevenson, "Solid Targetry Systems : A Brief History," in *Proceedings of the 15th International Conference on Cyclotrons and their Applications*, 1999, pp. 90– 93.
- [27] A. Stolarz, "Target preparation for research with charged projectiles," J. Radioanal. Nucl. Chem., vol. 299, no. 2, pp. 913– 931, 2014, doi: 10.1007/s10967-013-2652-2.
- [28] E. Bourbos, I. Giannopoulou, A. Karantonis, I. Paspaliaris, and D. Panias, "Electrodeposition of Rare Earth Metals from Ionic Liquids," *Rare Earths Ind. Technol. Econ. Environ. Implic.*, pp. 199–207, 2015, doi: 10.1016/B978-0-12-802328-0.00013-9.
- [29] Y. Kamimoto, T. Itoh, G. Yoshimura, K. Kuroda, T. Hagio, and R. Ichino, "Electrodeposition of rare-earth elements from neodymium magnets using molten salt electrolysis," *J. Mater. Cycles Waste Manag.*, vol. 20, no. 4, pp. 1918–1922, 2018, doi: 10.1007/s10163-

017-0682-5.

- [30] J. Zhou, X. Meng, R. Zhang, H. Liu, and Z. Liu, "Progress on Electrodeposition of Rare Earth Metals and Their Alloys," *Electrocatalysis*, vol. 12, no. 6, pp. 628–640, 2021, doi: 10.1007/s12678-021-00688-1.
- [31] W. Parker and R. Falk, "Molecular plating: A method for the electrolytic formation of thin inorganic films," *Nucl. Instruments Methods*, vol. 16, no. C, pp. 355–357, 1962, doi: 10.1016/0029-554X(62)90142-8.
- [32] G. Sibbens and T. Altzitzoglou, "Preparation of radioactive sources for radionuclide metrology," *Metrologia*, vol. 44, no. 4, 2007, doi: 10.1088/0026-1394/44/4/S09.
- [33] J. Pijarowska-Kruszyna, M. Pocięgiel, and R. Mikołajczak, "Radionuclide generators," in *Reference Module in Biomedical Sciences*, Elsevier, 2021.
- [34] G. F. Steyn *et al.*, "Cross sections of proton-induced reactions on 152Gd, 155Gd and 159Tb with emphasis on the production of selected Tb radionuclides," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 319, pp. 128–140, 2014, doi: 10.1016/j.nimb.2013.11.013.
- [35] S. Lehenberger *et al.*, "The low-energy β and electron emitter 161Tb as an alternative to 177Lu for targeted radionuclide therapy," *Nucl. Med. Biol.*, vol. 38, no. 6, pp. 917–924, 2011, doi: 10.1016/j.nucmedbio.2011.02.007.
- [36] A. Aziz and W. T. Artha, "Radiochemical separation of 161Tb from Gd/Tb matrix using Ln resin column," *Indones. J. Chem.*, vol. 16, no. 3, pp. 283–288, 2016, doi: 10.22146/ijc.21143.
- [37] E. J. Monroy-Guzman, F.; Salinas, "Separation of Micro-Macrocomponent Systems : 149 Pm – Nd , 161 Tb-Gd , Ho-Dy and 177 Lu-Yb by Extraction Chromatography," *J. Mex. Chem. Soc.*, vol. 59, no. 2, pp. 143–150, 2015.
- [38] S. Radhika, V. Nagaraju, B. Nagaphani Kumar, M. L. Kantam, and B. R. Reddy, "Solid-liquid extraction of Gd(III) and separation possibilities of rare earths from phosphoric acid solutions using Tulsion CH-93 and Tulsion CH-90 resins," *J. Rare Earths*, vol. 30, no. 12, pp. 1270–1275, 2012, doi: 10.1016/S1002-0721(12)60219-1.
- [39] N. Sivaraman, R. Kumar, S. Subramaniam, and P. R. Vasudeva Rao, "Separation of lanthanides using ion-interaction chromatography with HDEHP coated columns," *J. Radioanal*.

Nucl. Chem., vol. 252, no. 3, pp. 491–495, 2002, doi: 10.1023/A:1015894418606.

- [40] D. K. Tiung, N. A. Lebedev, N. Q. Main, and V. A. Khalkin, "Extraction chromatographic separation of carrier-free Tb and Pm generated in (p, xn)-type nuclear reactions," *J. Radioanal. Chem.*, vol. 30, no. 2, pp. 353–360, 1976, doi: 10.1007/BF02516968.
- [41] C. Müller *et al.*, "Future prospects for SPECT imaging using the radiolanthanide terbium-155 - production and preclinical evaluation in tumor-bearing mice," *Nucl. Med. Biol.*, vol. 41, no. S, pp. 58–65, 2014, doi: 10.1016/j.nucmedbio.2013.11.002.
- [42] G. Zoltán, "Nyíltláncú és makrociklusos ligandumok Mn(II)komplexei mint lehetséges MRI kontrasztanyagok," 2019.
- [43] R. A. Cloyd, S. A. Koren, and J. F. Abisambra, "Manganese-Enhanced Magnetic Resonance Imaging: Overview and Central Nervous System Applications With a Focus on Neurodegeneration," *Front. Aging Neurosci.*, vol. 10, no. December, pp. 1–22, 2018, doi: 10.3389/fnagi.2018.00403.
- [44] A. Francis and C. Forsyth, "Toxicity summary for manganese," 1995.
- [45] A. L. Wooten, T. A. Aweda, B. C. Lewis, R. B. Gross, and S. E. Lapi, "Biodistribution and PET Imaging of pharmacokinetics of manganese in mice using Manganese-52," *PLoS One*, vol. 12, no. 3, pp. 1–14, 2017, doi: 10.1371/journal.pone.0174351.
- [46] A. Earnshaw and N. N. Greenwood, *Az elemek kémiája II*. NEMZEDÉKEK TUDÁSA TANKÖNYVKIADÓ, 2004.
- [47] J. Fonslet, S. Tietze, A. I. Jensen, S. A. Graves, and G. W. Severin, "Optimized procedures for manganese-52: Production, separation and radiolabeling," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 121, no. November 2016, pp. 38–43, 2017, doi: 10.1016/j.apradiso.2016.11.021.
- [48] G. J. Kemerink *et al.*, "Effect of the positron range of 18F, 68Ga and 124I on PET/CT in lung-equivalent materials," *Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging*, vol. 38, no. 5, pp. 940–948, 2011, doi: 10.1007/s00259-011-1732-1.
- [49] D. D. Malkhede, P. M. Dhadke, and S. M. Khopkar, "Solventextraction separation of manganese(II) with calixarene substituted with an acetyl group at the lower rim," *Anal. Sci.*, vol. 15, no. 8, pp. 781–784, 1999, doi: 10.2116/analsci.15.781.
- [50] O. N. Kononova, G. L. Bryuzgina, O. V. Apchitaeva, and Y. S. Kononov, "Ion exchange recovery of chromium (VI) and manganese (II) from aqueous solutions," *Arab. J. Chem.*, vol. 12,

no. 8, pp. 2713–2720, 2019, doi: 10.1016/j.arabjc.2015.05.021.

- [51] M. Buchholz, I. Spahn, B. Scholten, and H. H. Coenen, "Crosssection measurements for the formation of manganese-52 and its isolation with a non-hazardous eluent," *Radiochim. Acta*, vol. 101, no. 8, pp. 491–499, 2013, doi: 10.1524/ract.2013.2083.
- [52] C. M. Lewis *et al.*, "52Mn production for PET/MRI tracking of human stem cells expressing divalent metal transporter 1 (DMT1)," *Theranostics*, vol. 5, no. 3, pp. 227–239, 2015, doi: 10.7150/thno.10185.
- [53] S. Watanabe *et al.*, "Production of positron emitters of metallic elements to study plant uptake and distribution," *Radiochim. Acta*, vol. 89, no. 11–12, pp. 853–858, 2001, doi: 10.1524/ract.2001.89.11-12.853.
- [54] S. A. Graves *et al.*, "Novel Preparation Methods of 52 Mn for ImmunoPET Imaging," *Bioconjug. Chem.*, vol. 26, no. 10, pp. 2118–2124, Oct. 2015, doi: 10.1021/acs.bioconjchem.5b00414.
- [55] G. J. Topping, P. Schaffer, C. Hoehr, T. J. Ruth, and V. Sossi,
 "Manganese-52 positron emission tomography tracer characterization and initial results in phantoms and in vivo," *Med. Phys.*, vol. 40, no. 4, pp. 1–8, 2013, doi: 10.1118/1.4793756.
- [56] G. Zweig, J. Sherma, and C. R. Company, *CRC Handbook of Chromatography*, no. 1. k. CRC Press, 1972.
- [57] M. Shahbandeh, "Worldwide production of grain in 2018/19, by type," 2019. [Online]. Available: https://www.statista.com/statistics/263977/world-grainproduction-by-type/.
- [58] B. C. Science, "Identifying Key Diseases in Corn." [Online]. Available: https://www.cropscience.bayer.us/learningcenter/articles/corn-diseases-threaten-yields.
- [59] R. Shaw and J. Newman, "Weather Stress in the Corn Crop," *Natl. Corn Handb.*, no. November, p. 4, 1985.
- [60] J. Dechorgnat, K. L. Francis, K. S. Dhugga, J. A. Rafalski, S. D. Tyerman, and B. N. Kaiser, "Root ideotype influences nitrogen transport and assimilation in maize," *Front. Plant Sci.*, vol. 9, no. April, pp. 1–16, 2018, doi: 10.3389/fpls.2018.00531.
- [61] G. Lemaire, L. Tang, G. Bélanger, Y. Zhu, and M. H. Jeuffroy, "Forward new paradigms for crop mineral nutrition and fertilization towards sustainable agriculture," *Eur. J. Agron.*, vol. 125, no. February, 2021, doi: 10.1016/j.eja.2021.126248.
- [62] N. C. M. Pereira et al., "Corn Yield and Phosphorus Use

Efficiency Response to Phosphorus Rates Associated With Plant Growth Promoting Bacteria," *Front. Environ. Sci.*, vol. 8, no. April, pp. 1–12, 2020, doi: 10.3389/fenvs.2020.00040.

- [63] L. F. Welch and R. L. Flannery, "Potassium Nutrition of Corn," 1985, pp. 647–664.
- [64] B. R. R. Bender, J. W. Haegele, M. L. Ruffo, and F. E. Below, "Modern Corn Hybrids' Nutrient Uptake Patterns," *Better Crop.*, vol. 97, pp. 7–10, 2013.
- [65] A. Soltangheisi, Z. Abdul Rahman, C. F. Ishak, H. Mohamed Musa, and H. Zakikhani, "Interaction effects of zinc and manganese on growth, uptake response and chlorophyll content of sweet com (Zea mays var. saccharata)," *Asian J. Plant Sci.*, vol. 13, no. 1, pp. 26–33, 2014, doi: 10.3923/ajps.2014.26.33.
- [66] G. Hood, V. Ramachandran, A. K. East, J. A. Downie, and P. S. Poole, "Manganese transport is essential for N2-fixation by Rhizobium leguminosarum in bacteroids from galegoid but not phaseoloid nodules," *Environ. Microbiol.*, vol. 19, no. 7, pp. 2715– 2726, 2017, doi: 10.1111/1462-2920.13773.
- [67] A. L. Socha and M. Lou Guerinot, "Mn-euvering manganese: The role of transporter gene family members in manganese uptake and mobilization in plants," *Front. Plant Sci.*, vol. 5, no. APR, pp. 1– 16, 2014, doi: 10.3389/fpls.2014.00106.
- [68] T. Mizuno, K. Emori, and S. I. Ito, "Manganese hyperaccumulation from non-contaminated soil in Chengiopanax sciadophylloides Franch. et Sav. and its correlation with calcium accumulation," *Soil Sci. Plant Nutr.*, vol. 59, no. 4, pp. 591–602, 2013, doi: 10.1080/00380768.2013.807213.
- [69] R. Millaleo, M. Reyes-Díaz, A. G. Ivanov, M. L. Mora, and M. Alberdi, "Manganese as essential and toxic element for plants: Transport, accumulation and resistance mechanisms," *J. Soil Sci. Plant Nutr.*, vol. 10, no. 4, pp. 476–494, 2010, doi: 10.4067/s0718-95162010000200008.
- [70] N. K. Fageria, V. C. Baligar, and R. B. Clark, "Micronutrients in Crop Production," 2002, pp. 185–268.
- [71] P. J. Kramer, "Fifty Years of Progress in Water Relations Research," *Plant Physiol.*, vol. 54, no. 4, pp. 463–471, Oct. 1974, doi: 10.1104/pp.54.4.463.
- [72] A. A. Steuter, A. Mozafar, and J. R. Goodin, "Water Potential of Aqueous Polyethylene Glycol," *Plant Physiol.*, vol. 67, no. 1, pp. 64–67, Jan. 1981, doi: 10.1104/pp.67.1.64.

- [73] J. E. Fernández and B. E. Clothier, "Water uptake by plants," in *AGRICULTURAL SCIENCES*, vol. 1, 2009, pp. 312–355.
- [74] P. Li, B. Chen, and F. Ding, "Gluconate enhanced the water uptake and improved the growth of rice seedlings under PEG-induced osmotic stress," *Plant Physiol. Biochem.*, vol. 156, no. July, pp. 514–523, 2020, doi: 10.1016/j.plaphy.2020.09.037.
- [75] C. Zhang and S. Shi, "Physiological and proteomic responses of contrasting alfalfa (Medicago sativa L.) varieties to peg-induced osmotic stress," *Front. Plant Sci.*, vol. 9, no. 3, pp. 1–21, 2018, doi: 10.3389/fpls.2018.00242.
- [76] M. A. Ahmad, R. Javed, M. Adeel, M. Rizwan, and Y. Yang, "PEG 6000-Stimulated Drought Stress Improves the Attributes of In Vitro Growth, Steviol Glycosides Production, and Antioxidant Activities in Stevia rebaudiana Bertoni," *Plants*, vol. 9, no. 11, p. 1552, Nov. 2020, doi: 10.3390/plants9111552.
- [77] A. Walter, F. Liebisch, and A. Hund, "Plant phenotyping: From bean weighing to image analysis," *Plant Methods*, vol. 11, no. 1, pp. 1–11, 2015, doi: 10.1186/s13007-015-0056-8.
- [78] C. Costa, U. Schurr, F. Loreto, P. Menesatti, and S. Carpentier,
 "Plant phenotyping research trends, a science mapping approach," *Front. Plant Sci.*, vol. 9, no. January, pp. 1–11, 2019, doi: 10.3389/fpls.2018.01933.
- [79] F. Fiorani and U. Schurr, "Future scenarios for plant phenotyping," *Annu. Rev. Plant Biol.*, vol. 64, pp. 267–291, 2013, doi: 10.1146/annurev-arplant-050312-120137.
- [80] Z. Li, R. Guo, M. Li, Y. Chen, and G. Li, "A review of computer vision technologies for plant phenotyping," *Comput. Electron. Agric.*, vol. 176, no. March, p. 105672, Sep. 2020, doi: 10.1016/j.compag.2020.105672.
- [81] Y. Zhou *et al.*, "An automatic non-invasive classification for plant phenotyping by MRI images: An application for quality control on cauliflower at primary meristem stage," *Comput. Electron. Agric.*, vol. 187, no. July, p. 106303, Aug. 2021, doi: 10.1016/j.compag.2021.106303.
- [82] D. L. Alexoff *et al.*, "PET imaging of thin objects: measuring the effects of positron range and partial-volume averaging in the leaf of Nicotiana tabacum," *Nucl. Med. Biol.*, vol. 38, no. 2, pp. 191– 200, Feb. 2011, doi: 10.1016/j.nucmedbio.2010.08.004.
- [83] R. Pieruschka and U. Schurr, "Plant phenotyping: Past, present, and future," *Plant Phenomics*, vol. 2019, 2019, doi:

10.34133/2019/7507131.

- [84] Q. Zhu, B. Wang, J. Tan, T. Liu, L. Li, and Y. G. Liu, "Plant Synthetic Metabolic Engineering for Enhancing Crop Nutritional Quality," *Plant Commun.*, vol. 1, no. 1, 2020, doi: 10.1016/j.xplc.2019.100017.
- [85] S. Alejandro, S. Höller, B. Meier, and E. Peiter, "Manganese in Plants: From Acquisition to Subcellular Allocation," *Front. Plant Sci.*, vol. 11, no. March, pp. 1–23, 2020, doi: 10.3389/fpls.2020.00300.
- [86] T. H. Hansen, T. C. de Bang, K. H. Laursen, P. Pedas, S. Husted, and J. K. Schjoerring, "Multielement Plant Tissue Analysis Using ICP Spectrometry," in *Plant Mineral Nutrients*, vol. 953, no. July, 2013, pp. 121–141.
- [87] T. Tsukamoto *et al.*, "52Mn translocation in barley monitored using a positron-emitting tracer imaging system," *Soil Sci. Plant Nutr.*, vol. 52, no. 6, pp. 717–725, 2006, doi: 10.1111/j.1747-0765.2006.00096.x.
- [88] S. Lee *et al.*, "Imaging corn plants with PhytoPET, a modular PET system for plant biology," *IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Rec.*, pp. 8–10, 2013, doi: 10.1109/NSSMIC.2013.6829796.
- [89] L. G. Nagy, *Radiokémia és izotóptechnika*. Tankönyvkiadó.
- [90] K. Buchtela, "RADIOCHEMICAL METHODS | Gamma-Ray Spectrometry," in *Encyclopedia of Analytical Science*, Elsevier, 2005, pp. 72–79.
- [91] M. N. Ullah, E. Pratiwi, J. Cheon, H. Choi, and J. Y. Yeom,
 "Instrumentation for Time-of-Flight Positron Emission Tomography," *Nucl. Med. Mol. Imaging (2010).*, vol. 50, no. 2, pp. 112–122, 2016, doi: 10.1007/s13139-016-0401-5.
- U. Ladabaum and S. Minoshima, "Positron Emission Tomography," in *Textbook of Gastroenterology, Fifth Edition*, vol. 2, 2009, pp. 3212–3225.
- [93] G. D. Hutchins, M. A. Miller, V. C. Soon, and T. Receveur,
 "Small Animal PET Imaging," *ILAR J.*, vol. 49, no. 1, pp. 54–65,
 Jan. 2008, doi: 10.1093/ilar.49.1.54.
- [94] E. Sarkadi-Priboczki *et al.*, "Three-Dimensional Imaging of High Performance Liquid Chromatography Processes Using a Mini Positron Emission Tomograph," *ChemistrySelect*, vol. 2, no. 30, pp. 9797–9802, Oct. 2017, doi: 10.1002/slct.201701242.
- [95] E. Sarkadi-Priboczki, M. Varga, I. Valastyan, K. Brezovcsik, A. Fenyvesi, and J. Molnar, "Compound-Specific Imaging of

Methanol Fuel Cell for Performance and Degradation Studies Using a Mini Positron Emission Tomograph," *Chemistry– Methods*, vol. 1, no. 7, pp. 315–322, Jul. 2021, doi: 10.1002/cmtd.202000054.

- [96] J. Imrek *et al.*, "Evaluation detector module of the miniPET-3 small animal PET scanner," *IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Rec.*, pp. 3790–3793, 2012, doi: 10.1109/NSSMIC.2012.6551870.
- [97] F. Tárkányi, A. Hermanne, F. Ditrói, S. Takács, and A. V. Ignatyuk, "Activation cross-sections of longer lived radioisotopes of proton induced nuclear reactions on terbium up to 65 MeV," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 127, pp. 7–15, Sep. 2017, doi: 10.1016/j.apradiso.2017.04.030.
- [98] "160Gd Q values." [Online]. Available: https://www.nndc.bnl.gov/qcalc/qcalcr.jsp.
- [99] A. L. Wooten, B. C. Lewis, and S. E. Lapi, "Cross-sections for (p,x) reactions on natural chromium for the production of 52,52m,54Mn radioisotopes," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 96, no. 1, pp. 154–161, Feb. 2015, doi: 10.1016/j.apradiso.2014.12.001.
- [100] E. Hess, B. Scholten, H. H. Coenen, S. M. Qaim, S. Takács, and F. Tárkányi, "Excitation function of the 18O(p,n)18F nuclear reaction from threshold up to 30 MeV," *Radiochim. Acta*, vol. 89, no. 37043, p. 357, 2001, doi: 10.1524/ract.2001.89.6.357.
- [101] F. Ditrói, F. Tárkányi, J. Csikai, M. S. Uddin, M. Hagiwara, and M. Baba, "Investigation of activation cross sections of the proton induced nuclear reactions on natural iron at medium energies," *AIP Conf. Proc.*, vol. 769, pp. 1011–1014, 2005, doi: 10.1063/1.1945177.
- [102] S. M. Lehenberger, "Evaluation and application of the low energy electron emitter 161Tb," 2010.
- [103] N. T. Nguyen, S. A. McInturf, and D. G. Mendoza-Cózatl, "Hydroponics: A Versatile System to Study Nutrient Allocation and Plant Responses to Nutrient Availability and Exposure to Toxic Elements," *J. Vis. Exp.*, vol. 2016, no. 113, pp. 1–9, Jul. 2016, doi: 10.3791/54317.
- [104] H. Marschner, H. Oberle, I. Cakmak, and V. Römheld, "Growth enhancement by silicon in cucumber (Cucumis sativus) plants depends on imbalance in phosphorus and zinc supply," *Plant Soil*, vol. 124, no. 2, pp. 211–219, 1990, doi: 10.1007/BF00009262.
- [105] H. Poorter *et al.*, "Pampered inside, pestered outside? Differences and similarities between plants growing in controlled conditions

and in the field," *New Phytol.*, vol. 212, no. 4, pp. 838–855, Dec. 2016, doi: 10.1111/nph.14243.

- [106] R. B. Clark, "Nutrient solution growth of sorghum and corn in mineral nutrition studies," *J. Plant Nutr.*, vol. 5, no. 8, pp. 1039– 1057, Jan. 1982, doi: 10.1080/01904168209363037.
- [107] I. Vogeler, S. R. Green, D. R. Scotter, and B. E. Clothier, "Measuring and modelling the transport and root uptake of chemicals in the unsaturated zone," *Plant Soil*, vol. 231, no. 2, pp. 161–174, 2001, doi: 10.1023/A:1010337132309.
- [108] T. M. Nakanishi *et al.*, "18F used as tracer to study water uptake and transport imaging of a cowpea plant," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 249, no. 2, pp. 503–507, 2001, doi: 10.1023/A:1013217425209.
- [109] T. M. NAKANISHI *et al.*, "Comparison of 15O-Labeled and 18F-Labeled Water Uptake in a Soybean Plant by PETIS (Positron Emitting Tracer Imaging System).," *Radioisotopes*, vol. 50, no. 6, pp. 265–269, 2001, doi: 10.3769/radioisotopes.50.265.
- [110] O. Fedorova, V. Nikolaeva, and R. Krasikova, "Automated SPEbased synthesis of 16α-[18F]fluoroestradiol without HPLC purification step," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 141, pp. 57–63, Nov. 2018, doi: 10.1016/j.apradiso.2018.08.007.
- [111] P. Schmor, "Review of Cyclotrons for the Production of Radioactive Isotopes for Medical and Industrial Applications," *Rev. Accel. Sci. Technol.*, vol. 04, no. 01, pp. 103–116, Jan. 2011, doi: 10.1142/S1793626811000574.

7 Mellékletek

7.1 1. számú melléklet

4. táblázat Orvosilag fontos ciklotronnal előállítható radioizotópok[111]

Radioizotóp	Felzési idő	Felhasználási mód	Felhasználási
			terület
Aktinium-225	10 nap	terápia	alfa-terápia
Asztácium-211	7,2 óra	terápia	alfa-terápia
Bizmut-213	46 perc	terápia	alfa-terápia
Szén-11	20 perc	Diagnosztika	PET
Nitrogén-13	10 perc	Diagnosztika	PET
Oxigén-15	2 perc	Diagnosztika	PET
Fluor-18	109 perc	diagnosztika	PET
Kobalt-57	272 nap	diagnosztika	In-vitro
Réz-64	13 óra	diagnosztika/terápia	PET/β ⁻
Réz-67	2,6 nap	terápia	β-
Gallium-67	78 óra	diagnosztika	SPECT
Gallium-68	68 perc	diagnosztika	PET
Indium-111	2,8 nap	diagnosztika	SPECT
Jód-123	13 óra	diagnosztika	PET
Jód-124	4,2 nap	diagnosztika	PET
Kripton-81m	13 másodperc	diagnosztika	SPECT
Rubidium-82	1,26 perc	diagnosztika	PET
Tallium-201	73 óra	diagnosztika	SPECT
Mangán-52	5,6 nap	diagnosztika	PET

Terbium-149	4,1 óra	terápia	Alfa-terápia
Terbium-152	17,5 óra	diagnosztika	PET
Terbium-155	5,32 nap	diagnosztika	SPECT