



---

**Forschungszentrum Karlsruhe**  
Technik und Umwelt

---

**Wissenschaftliche Berichte**  
FZKA 6516

# **Entwicklung und Produktion eines mit $^{131}\text{Cs}$ implantierten Stents**

**M. Heilmann**

Hauptabteilung Zyklotron  
Institut für Kernphysik

Dezember 2000

---



# Forschungszentrum Karlsruhe

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 6516

Entwicklung und Produktion eines mit  $^{131}\text{Cs}$  implantierten Stents

Melanie Heilmann

Hauptabteilung Zyklotron

Institut für Kernphysik

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

2000

**Als Manuskript gedruckt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor**

**Forschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe**

**Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft  
Deutscher Forschungszentren (HGF)**

**ISSN 0947-8620**

## Entwicklung und Produktion eines mit $^{131}\text{Cs}$ implantierten Stents

**Zusammenfassung:** Die Entwicklung und die Einzelschritte zur Herstellung eines mit dem radioaktiven Isotop  $^{131}\text{Cs}$  durch Implantation dotierten Stents wird beschrieben. Das Radioisotop  $^{131}\text{Cs}$  wurde über die Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  durch Beschuß mit 26 MeV Protonen am Karlsruher Zyklotron (KAZ) hergestellt. Beim Vergleich der gemessenen Ausbeute mit der theoretisch berechneten wurden Anzeichen gefunden, daß die zur Ausbeuteberechnung verwendete Anregungsfunktion stark überschätzt ist. Nach ausgiebigen Untersuchungen des Implantationsprozesses mit dem nicht-radioaktiven Cäsiumisotop  $^{133}\text{Cs}$  wurde ein radioaktiver Stent von 975 kBq Gesamtaktivität produziert. Die Dosisverteilung eines 185 MBq BX18-Stents (ISOSTENT) wurde rechnerisch simuliert.

## Development and production of a stent implanted with $^{131}\text{Cs}$

**Abstract:** This work describes the development and the production steps of a radioactive stent which is implanted with  $^{131}\text{Cs}$ . The radioisotope was produced in the nuclear reaction  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  with 26 MeV protons in the Karlsruher Zyklotron (KAZ). In comparison of the measured yield with the theoretically calculated yield it turned out that the excitation function used for the yield calculation is strongly overestimated. After extensive examinations of the implantation process with the non-radioactive cesium isotope  $^{133}\text{Cs}$  a radioactive stent with an activity of 975 kBq was produced. The dose distribution of a 185 MBq BX18-stent (ISOSTENT) was simulated.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Produktion von <math>^{131}\text{Cs}</math> am Karlsruher Zyklotron</b>	<b>8</b>
2.1	Kernphysikalische Grundlagen . . . . .	8
2.2	Rechnerische Bestimmung der Ausbeute . . . . .	13
2.2.1	Abschätzung der Anregungsfunktion von $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$ . . . . .	13
2.2.2	Berechnung der Ausbeute . . . . .	16
2.3	Experimentelle Bestimmung der Ausbeute . . . . .	18
2.3.1	Experimenteller Aufbau . . . . .	18
2.3.2	Produktion von $^{131}\text{Cs}$ . . . . .	21
2.3.3	Bestimmung der Aktivität . . . . .	22
<b>3</b>	<b>Implantation von <math>^{133}\text{Cs}</math> in Stents</b>	<b>30</b>
3.1	Experimenteller Aufbau der Implantationsanlage . . . . .	30
3.1.1	Ionenquelle . . . . .	31
3.1.2	Ablenkmagnet und elektrostatische Einzellinse . . . . .	31
3.1.3	Implantationskammer und Wobbler . . . . .	33
3.1.4	Vakuumsystem . . . . .	33
3.2	Materialzusammensetzung der verwendeten Stents . . . . .	34
3.3	Vorbereitungen der Implantation . . . . .	36
3.3.1	Präparation der Stents . . . . .	36
3.3.2	Voreinstellungen am Implanter . . . . .	36
3.4	Implantation von $^{133}\text{Cs}$ in Stents . . . . .	38
3.4.1	Definition und Bestimmung von Fluenz und Dosis . . . . .	38
3.4.2	$^{133}\text{Cs}$ -Implantationen mit anschließender Auger-Spektroskopie . . . . .	42
3.5	TRIM-Simulation zur Implantationstiefe von $^{133}\text{Cs}$ in Stahl . . . . .	49
<b>4</b>	<b>Implantation von <math>^{131}\text{Cs}</math> in einen Stent</b>	<b>55</b>
<b>5</b>	<b>Berechnung der Dosisverteilung eines <math>^{131}\text{Cs}</math>-Stents</b>	<b>57</b>
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>60</b>
6.1	Zusammenfassung . . . . .	60
6.2	Ausblick . . . . .	61
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>63</b>
<b>A</b>	<b>Medizinisches Lexikon</b>	<b>66</b>
<b>B</b>	<b>Programm zur Ausbeuteberechnung</b>	<b>69</b>
<b>C</b>	<b>Target - Programme</b>	<b>70</b>

<b>D Prinzip von Auger- und Rutherford-Rückstreu - Spektroskopie</b>	<b>74</b>
D.1 Auger-Spektroskopie (AES) . . . . .	74
D.2 Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS) . . . . .	74

# 1 Einleitung

In den Industrieländern sterben immer mehr Menschen an einem Herzinfarkt. Nach einer Statistik der Weltgesundheitsorganisation WHO waren Herz-Kreislaufkrankungen 1998 weltweit die Todesursache Nr.1. Europa ist Spitzenreiter, denn dort starben 25,5% an Herz-Kreislaufkrankungen [1].

Risikofaktoren sind vor allem erhöhte Cholesterinwerte, Diabetes, erbliche Veranlagung, Bewegungsmangel, Stress und Rauchen [2], um die wichtigsten zu nennen.

Dem plötzlichen Kollaps geht meist eine über Jahre dauernde Arterienverkalkung ("Arteriosklerose") voraus. Diese entsteht aufgrund eines nicht mehr einwandfrei funktionierenden Reparaturmechanismus, bei dem Verletzungen an der Arterieninnenwand, die durch Überbelastung – z.B. durch hohen Blutdruck – auftreten, nicht mehr ausreichend mit Blutplättchen verschlossen werden [3]. Dadurch wird die Arterienwand zum Gewebe hin für Flüssigkeiten durchlässig, was zu einer Anschwellung des Gewebes ("Ödem") führt. Vom körpereigenen Abwehrsystem werden daraufhin Lipoproteine in die innerste Schicht der Gefäßwand ("Intima", s.Anh.A) eingelagert. Diese sehr fetthaltigen Proteine, deren Hauptaufgabe der Transport von Cholesterin ist, produzieren dort Schaumzellen, die rasch zu wachsen beginnen. Hat sich die Zahl der Schaumzellen so vergrößert, daß die Arterienwand aufplatzt, ist eine neue Verletzung der Arterienwand entstanden, und der Ablauf des unzureichenden Reparaturmechanismus beginnt von vorne. Da die Lipoproteine auch Cholesterin an die verletzte Stelle bringen und sich dieses an den Gefäßwänden ablagert, wird das Gefäß zunehmend verengt (s.a.Abb.1).

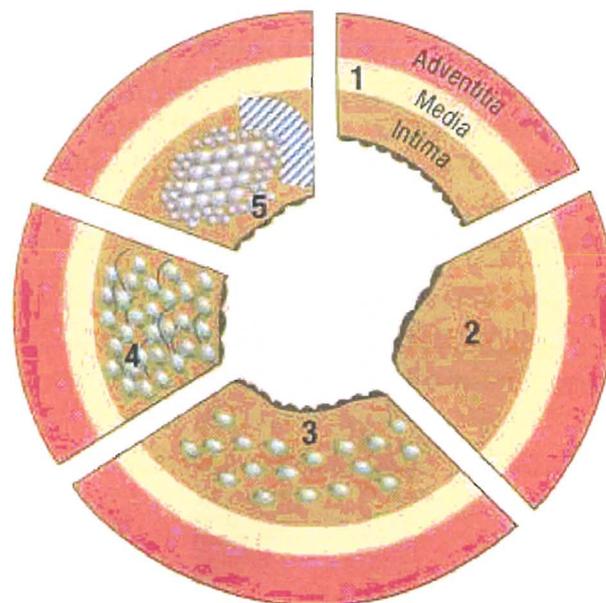


Abbildung 1: Kreisschema zur Gefäßverengung durch Anlagerung von Cholesterin und Bildung von Schaumzellen (normale Arterienwand (1) bis beginnende spangenförmige Atheromverengung (5)) [5]

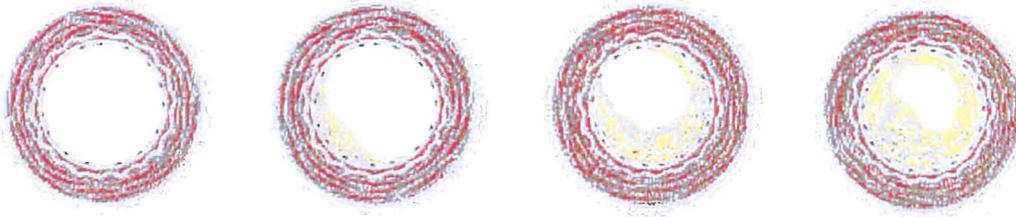


Abbildung 2: Verlauf einer Stenose (von links): normale Arterie, erste Ablagerung, leichte Einengung, deutliche Einengung [6]

Ein weiterer Prozeß, der zu einer Gefäßverengung führt, ist die Bildung von Bindegewebe in der Gefäßinnenwand aufgrund der zuvor erwähnten Flüssigkeitsansammlung. Die dadurch stark verdickte Gefäßschicht hat eine schlechtere Sauerstoffversorgung des dahinterliegenden Gewebes zur Folge. Dies führt meist zum Absterben des Gefäßabschnittes und begünstigt die Anlagerung von Kalksalzen.

Beide Arten von Ablagerungen, Fette in Form von Cholesterin und Kalk, können ganze Arterienabschnitte verengen. Diese Verengung kann über Jahre voranschreiten (s.Abb.2). Wenn die als Plaque bezeichnete Schicht jedoch abplatzt, treten große Risse (Läsionen) in der Arterienwand auf, die dann nur schwer wieder repariert werden können. Außerdem können die abgelösten Plaques die Arterie verstopfen, so daß ein Thrombus (Blutpfropf) entsteht, und es kommt zum Herzinfarkt. Um eine Sauerstoffunterversorgung des Herzens zu verhindern, muß das Gefäß dann schnellstmöglich wieder geöffnet werden.

Bevor es zu einem Eingriff kommt, muß der Kardiologe erst die verengte bzw. verschlossene Stelle lokalisieren. Dazu bringt er über einen Herzkatheter Kontrastmittel in die Herzgefäße ein, so daß diese auf den anschließenden Röntgenbildern besser zu erkennen sind. In Abb.3 ist eine Aufnahme einer solchen Koronarangiographie, wie die Untersuchung genannt wird, zu sehen.

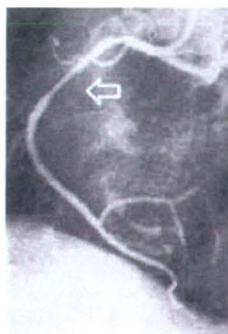


Abbildung 3: Röntgenaufnahme einer rechten Herzkranzarterie mit mittelgradiger Stenose (Pfeil) [7]

Entdeckt der Arzt eine Stenose (Gefäßverengung), wird er zunächst versuchen, das Ge-

fäß mittels Ballondilatation ("Perkutane transluminale Koronarangioplastie", PTCA) wieder zu öffnen. Über den gelegten Herzkatheter bringt er an einem Führungsdraht den Ballon an die verengte Stelle. Mit Drücken zwischen 4 und 18 bar wird dieser dann für maximal zwei Minuten expandiert (s.Abb.4). Durch die starke Expansion wird der Plaque zur Seite gedrückt. Der Verlauf der Behandlungsergebnisse sowie die Position des Ballons wird zwischendurch immer wieder vom Arzt durch Röntgenaufnahmen überprüft.

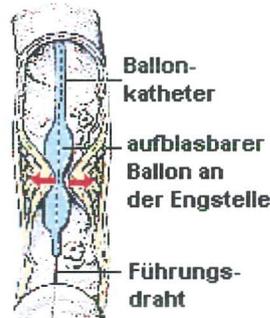


Abbildung 4: Prinzip der Ballondilatation [8]

Durch die Ballondilatation können jedoch mehrere Komplikationen auftreten, die zu einer erneuten Wiederverengung ("Restenose") führen können. Zum einen verliert das Gefäß aufgrund der starken Überdehnung an Elastizität und fällt in sich zusammen ("Remodeling"). Zum anderen wird die Gefäßwand durch den Ballon verletzt. Bei der Heilung kann sich aufgrund der Bildung von Narbengewebe wieder eine Gefäßverengung ausbilden.

Um das Remodeling zu verhindern, kann der Kardiologe eine Gefäßstütze aus Metall ("Stent") einsetzen. Dieses meist aus Edelstahl gefertigte, röhrenförmige Geflecht ist je nach Länge der Läsion zwischen 8 und 36 mm lang und hat einen anfänglichen Durchmesser von 1 bis 1,5 mm. Auf einem Ballon aufgezogen (s.Abb.5) wird es über den Katheter an die zu behandelnde Stelle gebracht. Erst dort wird der Stent an den Gefäßdurchmesser von 2 bis 4 mm angepaßt, indem ihn der expandierende Ballon in die Gefäßwand drückt. Auch dabei kann es zu Verletzungen der Gefäßwand und somit später zu verstärkter Narbenbildung kommen ("neointimale Proliferation"). Dieser Effekt wird noch verstärkt, da es sich bei dem Implantat um einen metallischen Fremdkörper handelt.

Der Stent hat also die gute Eigenschaft, das Gefäß nach einer Ballondilatation zu stabilisieren; jedoch erhöht die verstärkte Bildung von Narbengewebe auch die Wahrscheinlichkeit einer Restenose. Nun ist aus der Krebstherapie bekannt, daß ionisierende Strahlung das Zellwachstum stört und, abhängig von der applizierten Dosis, zum Absterben der Zellen führen kann.

Anfangs brachten Kardiologen eine  $\gamma$ -Quelle (z.B.  $^{192}\text{Ir}$ ) über einen Katheter ein und bestrahlten die Gefäßwand einige Minuten lang ("Afterloading") [14]. Diese Methode mit  $\gamma$ -Strahlern durchzuführen, ist aus Strahlenschutzgründen sehr aufwendig. Die Verwendung von  $\beta$ -Strahlern ist für den Einsatz im Herzlabor unproblematischer, da



Abbildung 5: Palmaz-Schatz-Stent<sup>®</sup> wird durch Ballonexpansion an Gefäßgröße angepaßt [9]: Nichtexpandierter Stent (oben) und mit dem Ballon expandierter Stent (unten)

die Elektronen nur eine kurze Reichweite haben und leicht abgeschirmt werden können. Da außerdem eine Anwendung nicht länger als einige Minuten dauern sollte, um den Blutfluß nicht zu lange zu behindern, muß für kurze Zeit eine hohe Dosis appliziert werden. Eine Möglichkeit, die Dosisrate enorm zu reduzieren, wäre die Implantation eines radioaktiven Stents - ein Vorschlag, der 1989 von Fischell et al. gemacht und 1991 zum Patent angemeldet wurde [13]. Der radioaktive Stent soll für einige Monate, je nach Halbwertszeit des Radionuklids, die Arterie bestrahlen und diese zugleich stabilisieren. Nachdem mit der Implantation von ersten radioaktiven Stents in Kanninchen gezeigt werden konnte, daß ionisierende Strahlung wirksam gegen Restenose ist ([10] - [12]), wurde im Oktober 1996 erstmals ein radioaktiver Stent in eine menschliche Arterie eingesetzt [14]. Es war ein ballon-expandierbarer Palmaz-Schatz-Stent<sup>®</sup>, der mit 37 kBq des  $\beta$ -Strahlers <sup>32</sup>P dotiert war. Die kurze Reichweite der monoenergetischen Elektronen von einigen Millimetern und die deshalb äußerst geringe Gesamtkörperdosis versprachen optimale Voraussetzungen, die Restenose deutlich verringern zu können. Weitere klinische Studien haben gezeigt, daß eine Aktivität > 120 kBq die gefürchtete Restenose im Stent verhindert [15]. An den Stent-Enden kam es allerdings nun sogar verstärkt zu Wiederverengungen. Man führte dies auf die geringe Reichweite der Strahlung zurück, was sich wohl hier als großer Nachteil herausstellte.

Ein Vorschlag war, die Stent-Enden mit einer größeren Aktivität, also mit einer größeren Dosis an <sup>32</sup>P, zu belegen als das Mittelstück ("Hot-End-Stents"). Eine andere Idee war es, einen Stent zu entwickeln, der mit einem Röntgenstrahler dotiert ist. Ein interessanter Kandidat ist z.B. <sup>131</sup>Cs. Es besitzt nur Röntgenlinien bei Energien um 30keV. Hinzu kommt, daß in der Hauptabteilung Zyklotron Anfang der 80er Jahre ein anderes Alkalimetall, <sup>81</sup>Rb, produziert und mit einem Massenseparator angereichert wurde [16], d.h. eine bestehende Technik kann nach einigen Modifikationen für die Produktion sowie die anschließende Implantation von <sup>131</sup>Cs in den Stent genutzt werden.

Die vorliegende Diplomarbeit beschreibt zunächst die Produktion von <sup>131</sup>Cs im Kompaktzyklotron des Forschungszentrums Karlsruhe über die protonen-induzierte Kernreaktion <sup>132</sup>Xe(p,2n)<sup>131</sup>Cs. Dazu mußten erst die Produktionsparameter bestimmt werden, bei denen eine maximale Ausbeute an <sup>131</sup>Cs erzielt werden kann. Dann sollte das Radioisotop in einen BX-Stent der Firma ISOSTENT implantiert werden. BX bedeutet, daß der Stent zur Implantation in das Herzgefäß mit einem Ballon expandiert wird (ballon expandable). Zuerst wurde jedoch das nicht-aktive Cäsium-Isotop

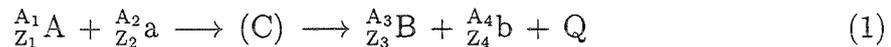
$^{133}\text{Cs}$  in einen Stent implantiert, um den Implantationsprozeß untersuchen zu können. Dazu wurde der implantierte Stent mit dem Rasterelektronenmikroskop (REM) sowie mit Auger- und Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS) untersucht. Zum Schluß wurde ein Stent mit  $^{131}\text{Cs}$  implantiert. Außerdem wurde die Dosisverteilung des Stents berechnet. Das verwendete Computer-Programm, welches speziell für Dosisberechnungen von Stents entwickelt worden war, mußte noch auf die neue Stent-Geometrie angepaßt werden, indem ein neuer Code für die Geometrie geschrieben wurde.

## 2 Produktion von $^{131}\text{Cs}$ am Karlsruher Zyklotron

Zunächst werden die wichtigsten Begriffe der Isotopenproduktion erläutert, die für die spätere Ausbeutebestimmung relevant sind. Dabei interessiert vor allem die Protonenenergie, bei der die Ausbeute an  $^{131}\text{Cs}$  über die Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  maximal ist. Im zweiten Abschnitt wird die zu erwartende Ausbeute – unter Vorgabe einer experimentell bestimmten Anregungsfunktion – berechnet. Um die Berechnungen zu testen, sind im dritten Abschnitt die Ergebnisse der Ausbeute-Messungen zu vier ausgewählten Protonenenergien angegeben. Abschließend wurden die Ergebnisse aus Rechnung und Messung miteinander verglichen.

### 2.1 Kernphysikalische Grundlagen

Ein Target A wird mit energiereichen Teilchen a beschossen. Übersteigt die Projektilenergie eine Startenergie  $E_s$  (Nomenklatur aus [19]), kommt es zu Kernreaktionen, bei denen verschiedene neue Nuklide entstehen können. Beim Ablauf einer Kernreaktion der allgemeinen Form [17]



$A_i$ : Massenzahl von  $i$                      $i = 1$  Target  
 $Z_i$ : Ladungszahl von  $i$                  $i = 2$  Projektil  
     $i = 3$  Produkt  
     $i = 4$  emittierte Teilchen

C: instabiler Zwischenkern (Compoundkern)  
 Q: Energiedifferenz zwischen Anfangs- und Endzustand

entsteht kurzzeitig ein instabiler Zwischenkern C (Compoundkern), der jedoch sofort in die Produktnuklide B unter Emission der Teilchen b zerfällt. Dabei kann entweder Energie freigesetzt werden ( $Q > 0$ ), oder es ist eine anfängliche Energiezufuhr von mindestens der Startenergie  $E_s$  erforderlich ( $Q < 0$ ).

Für den Fall " $Q < 0$ " hängt die Startenergie von zwei Anteilen ab [19]: Zum einen von der Schwellenenergie  $E_{thr}$ , welche durch Q bestimmt wird, und zum anderen von der effektiven Coulomb-Barriere  $E_c^{eff}$ , welche nur für geladene Projektile auftritt.

Die Schwellenenergie ist gerade die Energie, welche die Projektile haben müssen, um mindestens die Energie Q auf den Targetkern zu übertragen. Aus dem Impulserhaltungssatz läßt sich herleiten:

$$E_{thr} = \begin{cases} -Q \cdot \left(1 + \frac{A_2}{A_1}\right) & Q < 0 \\ 0 & Q \geq 0 \end{cases} \quad (2)$$

Sind die Projektile geladene Teilchen, müssen sie die Coulomb-Barriere der Targetatome überwinden, bevor sie mit ihnen wechselwirken können. Diese läßt sich abschätzen durch:

$$E_c = 1.02 \cdot \frac{Z_1 \cdot Z_2}{\sqrt[3]{A_1} + \sqrt[3]{A_2}} \quad (3)$$

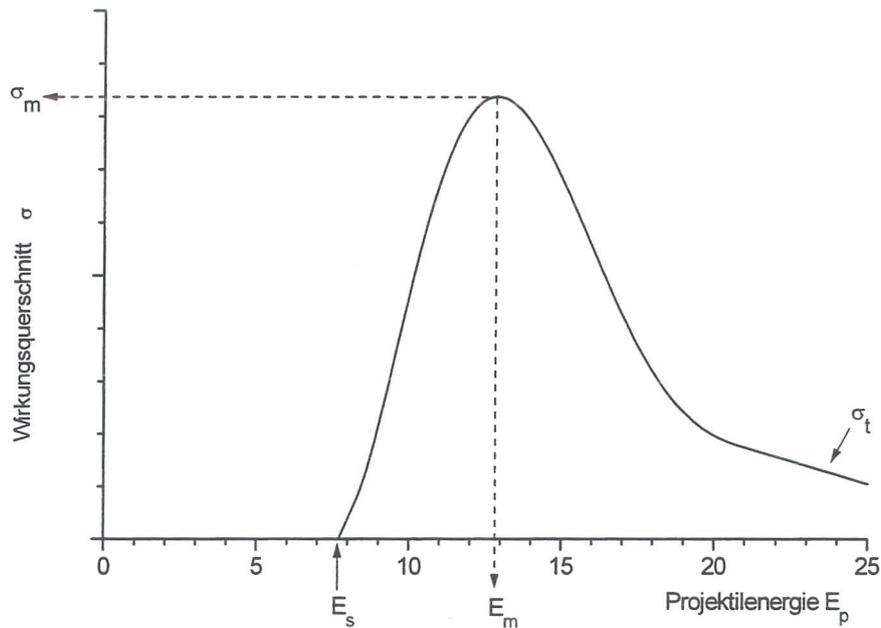


Abbildung 6: Schematische Darstellung einer Anregungsfunktion

Im Experiment stellt sich jedoch heraus, daß unter anderem bei (p,2n)-Reaktionen die berechnete Coulomb-Barriere zu hoch ist und eine niedrigere "effektive" Coulomb-Barriere  $E_c^{eff}$  angenommen werden muß [19].

Da die Startenergie einer Kernreaktion sowohl von der Schwellenenergie als auch von der effektiven Coulomb-Barriere der Reaktion abhängt, läßt sie sich aus dem Maximum beider Energieschwellen bestimmen:

$$E_s = \max(E_{thr}, E_c^{eff}) \quad (4)$$

Oberhalb der Startenergie läuft eine Kernreaktion ab, ihr Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  ist jedoch stark energieabhängig. Diese Abhängigkeit wird Anregungsfunktion genannt (s. Abb. 6). Für viele Kernreaktionen wurden Anregungsfunktionen gemessen. Daten findet man z.B. in der Datenbank EXFOR der *Nuclear Data Services* der *International Atomic Energy Agency (IAEA)* [28].

Ist das Produkt einer Kernreaktion ein Radionuklid, dann ist die produzierte Aktivität  $A$  von Interesse. Eine Anzahl radioaktiver Kerne  $N_0$  zerfällt nach dem Zerfallsgesetz [20, S.37]

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad (5)$$

mit der Zerfallskonstanten

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \quad (6)$$

exponentiell mit der Zeit  $t$ . Die Halbwertszeit  $T_{1/2}$  ist die Zeit, nach der die Hälfte der Kerne zerfallen sind. Die Aktivität  $A$ , welche in Becquerel angegeben wird, ist die Anzahl der Zerfälle pro Sekunde und wird durch die Zerfallskonstante des Radionuklids sowie

die Zahl der vorhandenen, zerfallfähigen Kerne bestimmt:

$$A(t) = -\frac{dN(t)}{dt} = \lambda \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (7)$$

Dabei wird

$$A_0 = \lambda \cdot N_0 \quad (8)$$

als Sättigungsaktivität bezeichnet.

Bei der Produktion von Radioisotopen müssen zur Aktivitätsberechnung zwei Anteile betrachtet werden:

1. Das Radionuklid wird mit einer konstanten Produktionsrate  $R$  im Zyklotron erzeugt.
2. Das produzierte Radionuklid zerfällt exponentiell mit der Zeit (s. Form. 5)

Daß die Zahl der Targetkerne durch die Kernreaktionen verringert wird, ist vernachlässigt worden.

Die Zahl der radioaktiven Kerne  $N$  ändert sich also mit der Bestrahlzeit wie folgt:

$$\frac{dN}{dt} = R - \lambda N(t) \quad (9)$$

Aus der Lösung der Differentialgleichung ergibt sich die Anzahl der radioaktiven Kerne, die man unmittelbar nach einer Bestrahlung der Dauer  $t_1$  vorfindet, aus

$$N(t_1) = \frac{R}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t_1}) \quad (10)$$

und die Aktivität aus

$$A(t_1) = \frac{dN}{dt} = R \cdot (1 - e^{-\lambda t_1}) \quad (11)$$

Aus der Produktionsrate  $R$  kann die Sättigungsaktivität  $A_0$  bestimmt werden, denn die Reaktionsrate der Kernreaktion ist gerade gleich der Sättigungsaktivität. Da die Reaktionsrate einer Kernreaktion das Produkt von Teilchenfluß  $\Phi_p$  [ $s^{-1}cm^{-2}$ ], Zahl der Targetatome  $N_t$  und Wirkungsquerschnitt  $\sigma(E)$  [ $cm^2$ ] ist, läßt sich die Sättigungsaktivität wie folgt berechnen:

$$A_0 = R = \Phi_p \cdot N_t \cdot \sigma(E) \quad (12)$$

Da die Sättigungsaktivität gleich der Produktionsrate ist, schreibt sich Form. 11 auch folgendermaßen

$$A(t_1) = A_0 \cdot [1 - e^{-\lambda t_1}] \quad (13)$$

In Abb. 7 ist diese Abhängigkeit der Aktivität von der Bestrahlzeit graphisch dargestellt. Mit zunehmender Bestrahlungsdauer – relativ zur Halbwertszeit  $T_{1/2}$  des produzierten Radionuklides – strebt die Aktivität gegen die Sättigungsaktivität  $A_0$ . Man sieht, daß sich Bestrahlungen länger als eine Halbwertszeit kaum lohnen.

Nach der Bestrahlung wird der zeitliche Verlauf der Aktivität nur noch durch den exponentiellen Abfall aus dem Zerfallsgesetz beschrieben. Daraus ergibt sich die Aktivität  $A$  zur Zeit  $t_2$  (ab Bestrahlungsende) bei einer Bestrahlungsdauer von  $t_1$  zu

$$A(t_1, t_2) = A_0 \cdot [1 - e^{-\lambda t_1}] \cdot e^{-\lambda t_2} \quad (14)$$

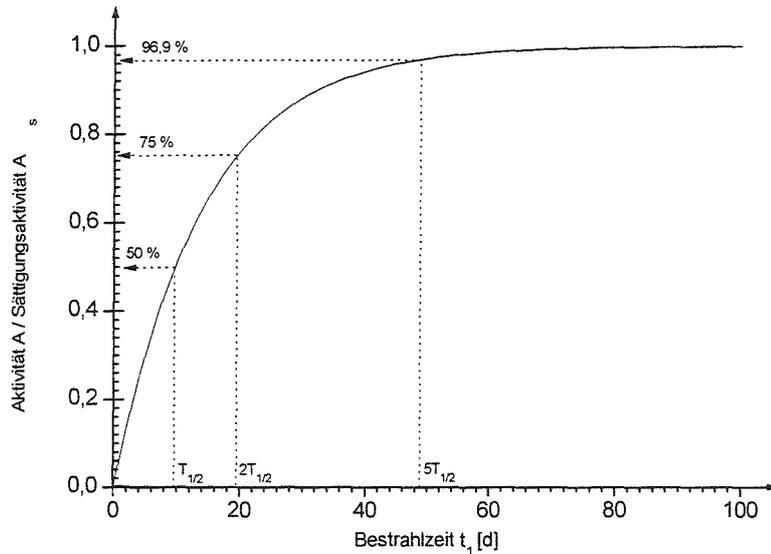


Abbildung 7: Zeitlicher Aktivitätszuwachs eines Radionuklides während der Bestrahlung am Beispiel von  $^{131}\text{Cs}$  mit  $T_{1/2} = 9,69 \text{ d}$

Form.14 wird in der Literatur häufig als "Aktivierungsformel" (engl. "activation formula") bezeichnet [20, S.95].

Setzt man nun in Form.12 anstelle des Teilchenflusses  $\Phi_p$  den Strom  $I$  in  $\mu\text{A}$  und anstatt der Anzahl der Targetatome  $N_t$  die Targetatomdichte  $n_t$  in  $\text{cm}^{-3}$  und die Targetdicke  $\Delta x$  in  $\text{cm}$  und gibt man den Wirkungsquerschnitt in  $\text{mb}$  an, berechnet sich die Sättigungsaktivität nach

$$A_0 = \frac{I}{10^6 \cdot ze} \cdot n_t \cdot \Delta x \cdot \frac{\sigma(E)}{10^{27}} \quad (15)$$

wobei  $z$  die Ladungszahl der Projektile und  $e$  die Elementarladung ist. Somit kann die Aktivität aus Form.(14) nach

$$A(t_1, t_2) = \frac{I}{10^6 \cdot ze} \cdot n_t \cdot \Delta x \cdot \frac{\sigma(E)}{10^{27}} \cdot [1 - e^{-\lambda t_1}] \cdot e^{-\lambda t_2} \quad (16)$$

mit:

- $I, z$  Strom in  $\mu\text{A}$  und Ladungszahl der Projektile
- $e$  Elementarladung
- $n_t$  Zahl der Targetatome pro  $\text{cm}^3$
- $\Delta x$  Targetdicke in  $\text{cm}$
- $\sigma(E)$  Wirkungsquerschnitt in  $\text{mb}$  in Abhängigkeit der Projektilenergie  $E$
- $\lambda$  Zerfallskonstante des Radionuklids
- $t_1$  Bestrahlzeit
- $t_2$  Zeit nach Bestrahlungsende

berechnet werden.

Die Ausbeute einer Kernreaktion  $Y$  (engl. "yield") ist definiert als Quotient aus Sättigungsaktivität und Teilchenstrom [20, S.103]:

$$Y = \frac{A_0}{I} \quad (17)$$

Wenn alle Projektile im Target gestoppt werden, spricht man von "Thick Target Yield". Ist die Bestrahlzeit  $t_1$  jedoch klein im Vergleich zur Halbwertszeit  $T_{1/2}$  des produzierten Radioisotopes, hängt die Ausbeute zusätzlich von der Bestrahlzeit  $t_1$  ab:

$$Y_{t_1} = Y \cdot (1 - e^{-\lambda t_1}) = \frac{A_0}{I} \cdot (1 - e^{-\lambda t_1}) \quad (18)$$

Setzt man für die Sättigungsaktivität Form.15 ein, erhält man für die Ausbeute eines "dicken" Targets

$$Y_{t_1} = \frac{1}{10^6 \cdot ze} \cdot n_t \cdot \Delta x \cdot \frac{\sigma(E)}{10^{27}} \cdot (1 - e^{-\lambda t_1}) \quad (19)$$

Wie schon erwähnt, ist per Definition das Target so dick, daß alle Projektile in ihm gestoppt werden. Das bedeutet aber, daß der von der Projektilenergie abhängige Wirkungsquerschnitt nicht konstant ist. Deshalb muß das Target in infinitesimal dünne Scheiben der Dicke  $dx$  unterteilt werden, um dann den Wirkungsquerschnitt über den gesamten Energiebereich, den die Projektile im Target durchlaufen, zu integrieren. Dazu wird folgende Substitution vorgenommen:

$$\Delta x = \frac{1}{\frac{dE}{dx}} \cdot \Delta E \quad \longrightarrow \quad dx = \int_{E_s}^{E_1} \frac{1}{\frac{dE}{dx}} \cdot dE \quad (20)$$

↓

$$\Delta x \cdot \sigma(E) \quad \longrightarrow \quad \int_{E_s}^{E_1} \frac{\sigma(E)}{\frac{dE}{dx}} \cdot dE \quad (21)$$

mit:  $\frac{dE}{dx}$  Energieverlust der Projektile im Target [MeV/cm]

$E_s$  Startenergie der Kernreaktion (für  $E < E_s$  ist  $\sigma(E) = 0$ )

$E_1$  Eintrittsenergie der Projektile ins Target

Somit ergibt sich folgende Formel für die **Ausbeute eines "dicken" Targets** nach der Bestrahlzeit  $t_1$

$$Y_{t_1} = (1 - e^{-\lambda t_1}) \cdot \frac{1}{10^6 \cdot ze} \cdot \frac{n_t}{10^{27}} \cdot \int_{E_s}^{E_1} \frac{\sigma(E)}{\frac{dE}{dx}} dE \quad (22)$$

Ist nun aber das Target so dünn, daß die Projektile dieses mit einer Energie  $E_2$ , die größer als die Startenergie  $E_s$  der Kernreaktion ist, verlassen, so muß als untere Integralgrenze anstelle der Startenergie  $E_s$  die Austrittsenergie  $E_2$  gesetzt werden. Daraus ergibt sich eine für jede Targetdicke gültige Formel zur Berechnung der

**Ausbeute**

$$Y_{t_1} = (1 - e^{-\lambda t_1}) \cdot \frac{1}{10^6 \cdot ze} \cdot \frac{n_t}{10^{27}} \cdot \int_{E_2}^{E_1} \frac{\sigma(E)}{\frac{dE}{dx}} dE \quad (23)$$

mit:	$\lambda$	Zerfallskonstante des Radionuklids
	$t_1$	Bestrahlzeit
	$z$	Ladungszahl des Projektils
	$e$	Elementarladung
	$n_t$	Zahl der Targetatome pro $\text{cm}^3$
	$\sigma(E)$	Anregungsfunktion der Kernreaktion in mb
	$\frac{dE}{dx}$	Energieverlust der Projektile im Target in $\text{MeVcm}^{-1}$
	$E_1$	Eintrittsenergie der Projektile ins Target in MeV
	$E_2$	Austrittsenergie der Projektile aus dem Target in MeV (falls $E_2 < E_s \rightarrow$ untere Integralgrenze: $E_s$ )

## 2.2 Rechnerische Bestimmung der Ausbeute

Zur Berechnung der Ausbeute einer Kernreaktion muß die Anregungsfunktion  $\sigma(E)$  bekannt sein. Bisher liegen aber für protonen-induzierte Kernreaktionen an  $^{132}\text{Xe}$  noch keine experimentellen Daten vor. Es gibt jedoch eine Möglichkeit aus einer untersuchten Kernreaktion mit gleicher Ladungszahl  $Z$  und ähnlicher Massenzahl  $A$  des Targetisotopes, die gesuchte Anregungsfunktion abzuschätzen. In Landolt-Börnstein's "New Series I/5c" [19] findet sich ein solches Verfahren, mit dem eine Anregungsfunktion für die gesuchte Kernreaktion abgeschätzt werden konnte.

### 2.2.1 Abschätzung der Anregungsfunktion von $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$

Da zur Kernreaktion  $^{126}\text{Xe}(p,2n)^{125}\text{Cs}$  experimentelle Daten in der Datenbank EXFOR [28] vorliegen, wurde aus ihrer Anregungsfunktion die von  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  ermittelt. Zunächst wurde an die experimentellen Meßpunkte der Anregungsfunktion  $^{126}\text{Xe}(p,2n)^{125}\text{Cs}$  [21] mit der Startenergie  $E_s = 14,1\text{MeV}$  [19] eine Gaußfunktion

$$\sigma(E)_{\text{Cs-125}} = \sigma_0 + \frac{A}{w \cdot \sqrt{\frac{\pi}{2}}} \cdot e^{-\frac{2(E-E(\sigma_m))^2}{w^2}} \quad (24)$$

angepaßt, so daß sich bei Minimierung von  $\chi^2$  für die Parameter  $\sigma_0$ ,  $A$ ,  $w$  und  $E(\sigma_m)$  folgende Werte ergaben (s.Abb. 8):

$$\begin{aligned} \sigma_0 &= 15,07756 \\ A &= 9096,68059 \\ w &= 10,12444 \\ E(\sigma_m) &= 24,2901 \end{aligned}$$

Der maximale Wirkungsquerschnitt der Funktion  $\sigma(E)_{\text{Cs-125}}$  liegt somit bei der Protonenenergie  $E(\sigma_m) = 24,3\text{MeV}$ .

Um nun daraus auf die Anregungsfunktion der Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  zu schließen, muß

1. die Energie des maximalen Wirkungsquerschnittes  $E(\sigma_m)$  sowie
2. die Höhe der Anregungsfunktion  $\sigma(E)$

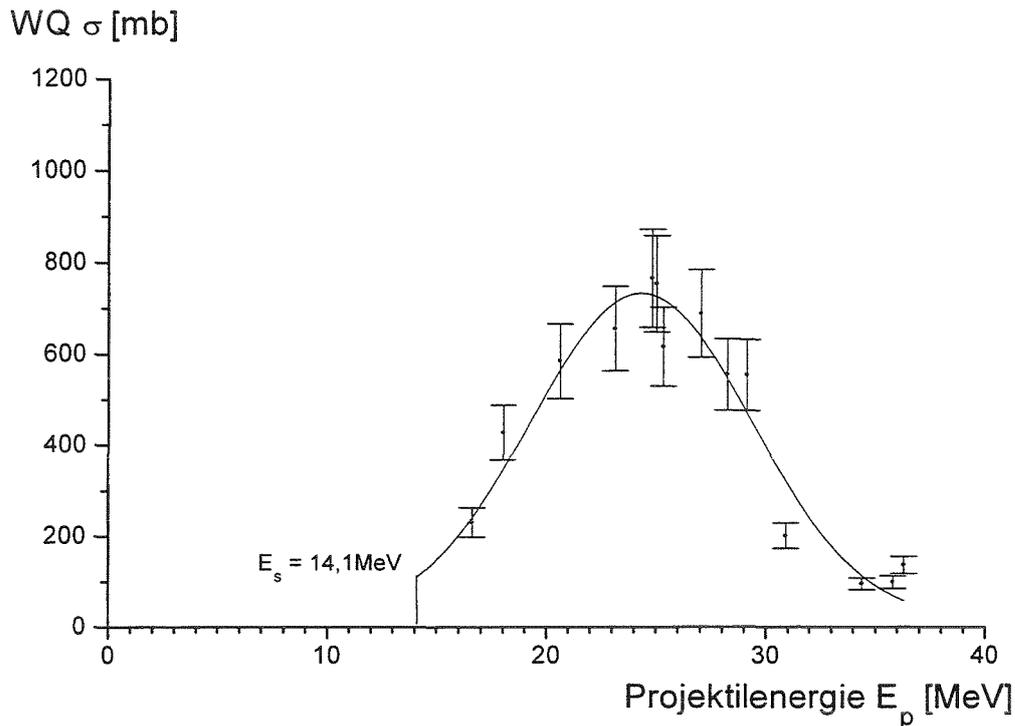


Abbildung 8: Anregungsfunktion der Kernreaktion  $^{126}\text{Xe}(p,2n)^{125}\text{Cs}$  [21]

korrigiert werden.

Zu 1. Für  $^{125}\text{Cs}$  beträgt die Energiedifferenz zwischen Startenergie und Maximum der Anregungsfunktion:

$$\Delta E_{\text{Cs-125}} = E(\sigma_m) - E_s = (24,3 - 14,1)\text{MeV} = 10,2\text{MeV} \quad (25)$$

Um daraus die Energiedifferenz  $\Delta E$  für  $^{131}\text{Cs}$  zu ermitteln, muß man Gleichung (25) mit einem Korrekturfaktor [19, S.90 Fig.22] multiplizieren:

$$\Delta E_{\text{Cs-131}} = \Delta E_{\text{Cs-125}} \cdot \frac{11,3}{11,9} = 10,2\text{MeV} \cdot 0,95 = 9,7\text{MeV} \quad (26)$$

Zusammen mit der Startenergie für  $^{131}\text{Cs}$   $E_s = 10,1\text{MeV}$  [19] läßt sich daraus die Energie maximalen Wirkungsquerschnittes  $E(\sigma_m)$  berechnen:

$$E(\sigma_m)_{\text{Cs-131}} = E_s + \Delta E = (10,1 + 9,7)\text{MeV} = 19,8\text{MeV} \quad (27)$$

Somit muß die gegebene Anregungsfunktion von  $^{125}\text{Cs}$  um

$$\Delta E_{\text{Cs-125}} - \Delta E_{\text{Cs-131}} = (24,3 - 19,8)\text{MeV} = 4,5\text{MeV} \quad (28)$$

zu niedrigeren Energien verschoben werden.

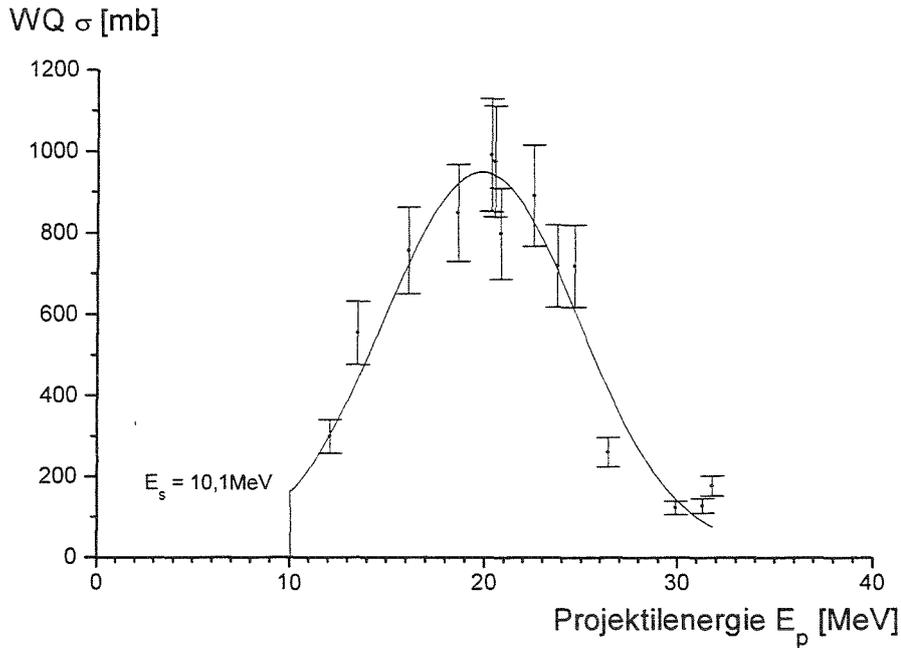


Abbildung 9: Abgeschätzte Anregungsfunktion der Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$

Zu 2. Nun muß noch die gesamte Anregungsfunktion  $\sigma(E)$  mit einem zweiten Korrekturfaktor [19, S.86 Fig.14] multipliziert werden:

$$\sigma(E)_{\text{Cs-131}} = \sigma(E)_{\text{Cs-125}} \cdot \frac{1050}{810} = \sigma(E)_{\text{Cs-125}} \cdot 1,296 \quad (29)$$

Das heißt, die Wirkungsquerschnitte der gesuchten Kernreaktion liegen um 1,296 höher als die der gegebenen.

Aus diesen beiden Korrekturen lassen sich aus den experimentellen Daten der Reaktion  $^{126}\text{Xe}(p,2n)^{125}\text{Cs}$  Punkte der Anregungsfunktion von  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  berechnen (s.Abb.9), an welche dann eine Gaußfunktion

$$\sigma(E)_{\text{Cs-131}} = \sigma_0 + \frac{A}{w \cdot \sqrt{\frac{\pi}{2}}} \cdot e^{-\frac{2(E-E(\sigma_m))^2}{w^2}} \quad (30)$$

mit folgenden Parametern

$$\begin{aligned} \sigma_0 &= 23,57342 \\ A &= 11604,7031 \\ w &= 9,99508 \\ E(\sigma_m) &= 19,81908 \end{aligned}$$

angepaßt wurde. Das Maximum der Anregungsfunktion  $\sigma(E)_{\text{Cs-131}}$  liegt bei 19,8 MeV.

Protonenenergie (Zyklotron) [MeV]	Eintrittsenergie $E_1$ [MeV]	Austrittsenergie $E_2$ [MeV]
22	20,996	12,453
24	23,064	15,372
26	25,123	18,086
28	27,173	20,663
30	29,218	23,145

Tabelle 1: Ein- und Austrittsenergien  $E_1$  und  $E_2$  der Protonen bzgl. des Xe-Gastargets

### 2.2.2 Berechnung der Ausbeute

Mit der ermittelten Anregungsfunktion  $\sigma(E)_{Cs-131}$  kann nun nach Form.23 die Ausbeute der Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  berechnet werden. Die Eintrittsenergie der Protonen ins Target wird von 22MeV bis 30MeV in 2MeV-Schritten variiert.

Da sich jedoch vor dem eigentlichen Target, dem  $^{132}\text{Xe}$ -Gas, noch zwei Molybdänfolien von 25 und 50  $\mu\text{m}$  Dicke befinden, muß der Energieverlust der Protonen an den Folien berücksichtigt werden. Mit dem Programm TARGET [26], welches den Energieverlust geladener Teilchen an einem Target berechnet, wurden aus den Ausgangsenergien (22 bis 30 MeV), mit denen die Protonen aus dem Zyklotron kommen, die eigentlichen Eintrittsenergien  $E_1$  sowie die Austrittsenergien  $E_2$  nach Durchgang durch das Xenon-Gastarget berechnet (s.Tab.1). Dabei wurde eine Targetlänge von  $l = 240\text{mm}$  und ein Gasdruck von  $p = 4\text{bar}$  bei einer Gastemperatur von  $20^\circ\text{C}$  vorausgesetzt (Gasdruck und -temperatur gelten für das Target im unbestrahlten Zustand.).

Zur Berechnung der Ausbeute nach Form.23 wurde für den Energieverlust allerdings folgender Ausdruck eingesetzt [18, S.48]:

$$\frac{dE}{dx} = -\frac{4\pi z^2 e^4}{m_e c^2 \beta^2} \cdot n_t \cdot Z \cdot \left[ \ln \frac{2m_e c^2 \beta^2}{I} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right] \quad (31)$$

Somit konnte die Ausbeute der  $^{131}\text{Cs}$ -Produktion nach folgender Formel berechnet werden:

$$Y_{t_1} = (1 - e^{-\lambda t_1}) \cdot \frac{1}{10^{33} z e} \cdot \int_{E_2}^{E_1} \frac{\sigma(E)_{Cs-131} dE}{-\frac{4\pi z^2 e^4 Z}{m_e c^2 \beta(E)^2} \cdot \left[ \ln \frac{2m_e c^2 \beta(E)^2}{I} - \ln(1 - \beta(E)^2) - \beta(E)^2 \right]} \quad (32)$$

mit:	$\lambda$	Zerfallskonstante des Radionuklids: $2,98 \cdot 10^{-3} \text{ h}^{-1}$
	$t_1$	Bestrahlzeit: 1 h
	$z$	Ladungszahl des Projektils: $z = 1$
	$e$	Elementarladung: $e^4 = (1,44 \cdot 10^{-13} \text{ MeVcm}^2)^2$
	$m_e$	Ruhemasse des Elektrons: $511 \text{ keV}/c^2$
	$\beta(E)^2$	Verhältnis von Projektilgeschwindigkeit zu Lichtgeschwindigkeit: $\frac{v}{c} = 1 - \frac{E_p^2}{(E + E_p)^2}$
	$E_p$	Ruheenergie des Projektils: $E_p = 938,4 \text{ MeV}$
	$Z$	Ladungszahl des Targetmaterials: $Z = 54$

Protonenenergie (Zyklotron) [MeV]	Eintrittsenergie $E_1$ [MeV]	Austrittsenergie $E_2$ [MeV]	Ausbeute Y [MBq/10 $\mu$ Ah]
22	20,996	12,453	573,772
24	23,064	15,372	658,361
26	25,123	18,086	662,451
28	27,173	20,663	554,232
30	29,218	23,145	314,646

Tabelle 2: Berechnete Ausbeute der  $^{131}\text{Cs}$ -Produktion für Protonenenergien von 22 bis 30 MeV

- I Ionisationspotential [18, S.48] des Targetmaterials:  
 $I = (11,5 \cdot Z) \text{ eV} = 621 \text{ eV}$
- $E_1$  Eintrittsenergie der Projektile ins Target in MeV (s.Tab.1)
- $E_2$  Austrittsenergie der Projektile aus dem Target in MeV (s.Tab.1)  
(falls  $E_2 < E_s \rightarrow$  untere Integralgrenze:  $E_s = 10,1 \text{ MeV}$ )
- $\sigma(E)_{Cs-131}$  Anregungsfunktion der Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$

Die Ausbeute an  $^{131}\text{Cs}$  wurde für die in Tab.1 angegebenen Energien  $E_1$  und  $E_2$  berechnet, wobei ein Strom von  $10 \mu\text{A}$  und eine Bestrahlungsdauer von 1 Stunde zugrunde gelegt wurde. In Tab.2 sind die  $^{131}\text{Cs}$ -Ausbeuten bezüglich der Protonenenergie aufgelistet und in Abb.10 graphisch dargestellt. Aus der Rechnung ergibt sich demnach eine maximale Ausbeute an  $^{131}\text{Cs}$  von 662,451 MBq für eine Protonenenergie von 26 MeV, einem -strom von  $10\mu\text{A}$  und einer Bestrahlzeit von 1h.

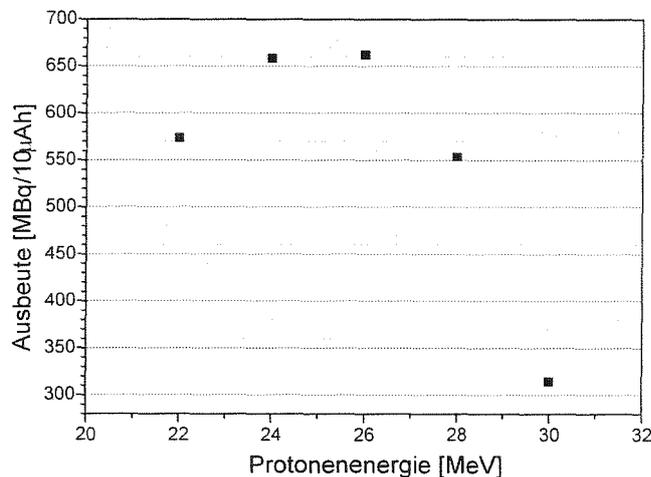


Abbildung 10: Rechnerisch bestimmte Ausbeute der  $^{131}\text{Cs}$ -Produktionen in Abhängigkeit der Protonenenergie

## 2.3 Experimentelle Bestimmung der Ausbeute

Da am Karlsruher Zyklotron (KAZ) bereits in den 80er Jahren ein anderes Alkalimetall,  $^{81}\text{Rb}$ , produziert wurde [16], konnte die Technologie – bis auf einige Modifikationen – für die Cäsium-Produktion übernommen werden.

Zur Messung einiger Punkte der Ausbeutekurve der Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  wurden Protonen mit den Energien 24 MeV, 26 MeV, 28 MeV und 30 MeV auf ein mit  $^{132}\text{Xe}$  gefülltes Target geschossen. Dabei entstanden natürlich auch noch andere Nuklide. In der folgenden Tabelle sind die wichtigsten Kernreaktionen mit ihren Produkten und deren Halbwertszeiten und Startenergien [19] aufgelistet:

Reaktionstyp	Produktisotop	Halbwertszeit $T_{1/2}$	Startenergie $E_s$ [MeV]
p,2n	$^{131}\text{Cs}$	9,69d	10,1
p,n	$^{132}\text{Cs}$	6,48d	4,35
p,3n	$^{130}\text{Cs}$	29,21m	19,5
p,4n	$^{129}\text{Cs}$	32,06h	27,1
p,pn	$^{131}\text{Xe}$	stabil	9,0
p,p2n	$^{130}\text{Xe}$	stabil	15,7

Die produzierten Isotope  $^{131}\text{Xe}$  und  $^{130}\text{Xe}$  werden nach der Bestrahlung zusammen mit  $^{132}\text{Xe}$  in die Vorratsflasche transferiert, so daß sich die Isotopenreinheit des Targetgases mit der Zeit verschlechtert. Das Radionuklid  $^{130}\text{Cs}$  wird in der Aktivitätsmessung, die immer erst einige Tage nach Bestrahlungsende vorgenommen wurde, nicht mehr nachgewiesen, da die Halbwertszeit nur knapp 30 Minuten beträgt. Das Radioisotop  $^{129}\text{Cs}$  wird nur in den Bestrahlungen bei 28 und 30 MeV Protonenenergie nachgewiesen. Aber auch seine Halbwertszeit ist relativ kurz im Vergleich zu der von  $^{131}\text{Cs}$  und  $^{132}\text{Cs}$ , so daß sein Anteil an der radioaktiven Verunreinigung klein ist.

### 2.3.1 Experimenteller Aufbau

#### Das Karlsruher Zyklotron (KAZ)

Das KAZ [22] liefert Protonen mit Energien zwischen 15 und 42MeV bei Strahlströmen bis zu  $200\mu\text{A}$ . Das Zyklotron ist eine  $\text{H}^-$ -Maschine, da die Extraktion von  $\text{H}^-$ -Ionen über Stripperfolien bei großen Strömen nahezu verlustfrei ist. Die Ionenquelle vom Typ "Penning" erzeugt also einfach negativ geladene Wasserstoff-Ionen. Diese werden senkrecht zum Magnetfeld in zwei Hohlelektroden ("Dees") beschleunigt, indem an die Dees eine hochfrequente Wechselspannung angeschlossen ist (s.Abb.11). Die Extraktion der  $\text{H}^-$ -Ionen erfolgt über das Prinzip der Ladungsumkehr mit sogenannten "Stripperfolien" aus pyrolytischem Kohlenstoff (s.Abb.12). Durch Veränderung der Folienposition kann die Extraktionsenergie kontinuierlich variiert werden. In Tab.3 sind noch einmal alle wichtigen Parameter zusammengefaßt [22].

Vom Zyklotron führen zwei Strahlrohre in die beiden Experimentierhallen, die gleichzeitig mit Protonen versorgt werden können. In der einen Halle werden Untersuchungen über das Verschleißverhalten von Maschinenbauteilen mittels Aktivierung gemacht, in

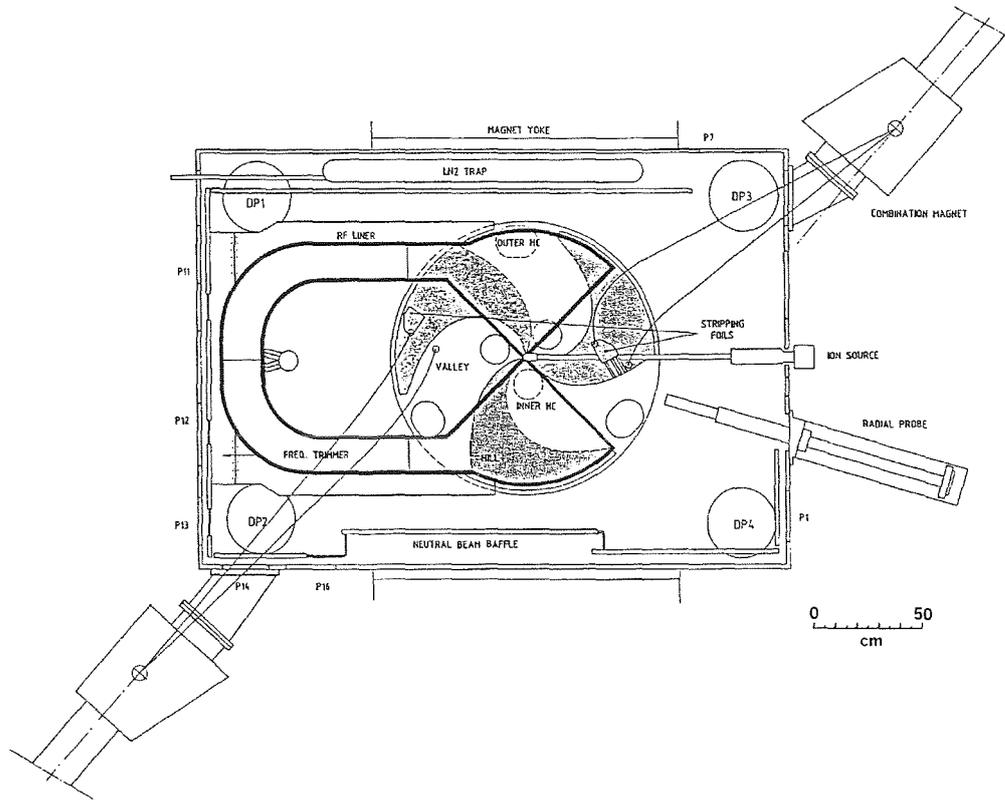


Abbildung 11: Zeichnung des Karlsruher Zyklotrons

Beschleunigtes Ion	$H^-$
Strahlenergie	15 - 42 MeV
Extrahierter Strahlstrom	200 $\mu A$
Transversale Emittanz	30 mm mrad
Beschleunigungsfrequenz	26,8 MHz
Polschuhdurchmesser	120 cm
Extraktionsradius (42 MeV)	53 cm
Mittleres Magnetfeld	18,4 kG
Ionenquellentyp	Penning
Feld im starken Sektor	24 kG
Extraktionsphilosophie	Stripping

Tabelle 3: Wichtige Parameter des Karlsruher Kompaktzyklotron [22]

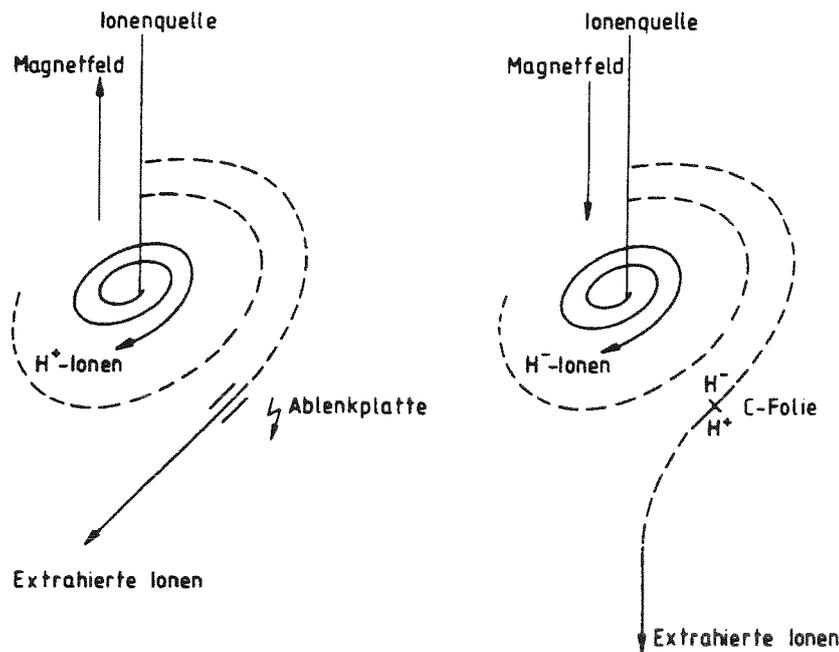


Abbildung 12: Mögliche Extraktionsmethoden: Elektrostatische Ablenkplatte bei Protonen (links) und Stripper-Folie bei H<sup>-</sup>-Ionen (rechts) [22]

der anderen stehen Targets zur Produktion der Radioisotope <sup>123</sup>J, <sup>18</sup>F und <sup>131</sup>Cs. Jod und Fluor wird für pharmazeutische Zwecke weiterverarbeitet [23]. Anfang der 80er Jahre wurde mit dem Cäsium-Target das Radioisotop <sup>81</sup>Rb produziert [16]

### Das Cäsium-Target

Zur Produktion des Radioisotopes <sup>131</sup>Cs über die protoneninduzierte Kernreaktion <sup>132</sup>Xe(p,2n)<sup>131</sup>Cs, wird ein Gastarget benutzt, das mit hochangereichertem <sup>132</sup>Xe gefüllt ist. Die Isotopenreinheit des Gases beträgt nach Angaben des Herstellers mindestens 99,95% [24]. Da dieses Gas sehr teuer ist, ist das Target mit einem eigens in der Hauptabteilung Zyklotron (HZY) entwickelten Sicherheitssystem ausgestattet. Vor dem konisch geformten Targetvolumen von 24cm Länge (Durchmesser: 12mm (vorne) bzw. 20mm (hinten)), befindet sich ein Sicherheitsvolumen, in dem entwichenes Gas aufgefangen und von dort in die Vorratsflasche zurücktransferiert werden kann (s.Abb.13). Dies kann z.B. der Fall sein, falls die, als Eintrittsfenster des Targets dienende, 50µm dicke Molybdänfolie reißt. Im Normalfall hält sie Protonenströmen bis 50µA und Targetdrücken bis 40bar stand [25]. Das Sicherheitsvolumen besitzt ebenfalls eine Molybdänfolie als Eintrittsfenster, allerdings ist diese nur 25µm dick.

Die Steuerung des Targets erfolgt über eine speicherprogrammierbare Steuerung (SPS) des Typs SIMATIC. Die verwendete Version des von Siemens entwickelten Systems ist S5. Es können verschiedene, eigens programmierte Prozeduren abgerufen werden. Zur Produktion von <sup>131</sup>Cs sind folgende 5 Programme nacheinander im Einsatz:

1. Evakuieren von Target- und Sicherheitsvolumen (Programm Nr.5)

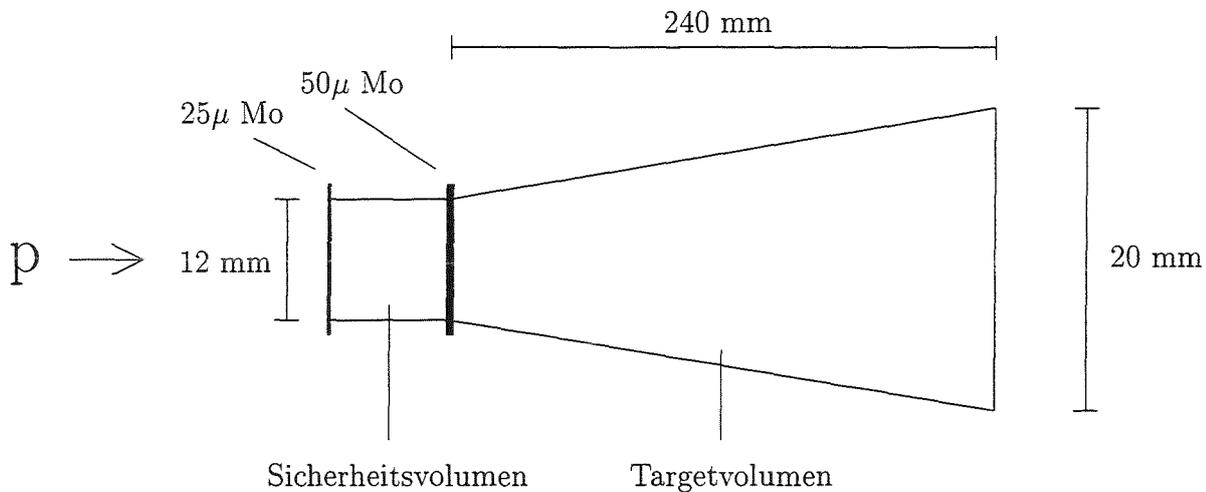


Abbildung 13: Schematische Darstellung des Xenon-Gastargets [24]

2. Gastransfer von der Vorratsflasche ins Target (Programm Nr.6)
3. Gastransfer vom Target in die Vorratsflasche (Programm Nr.7)
4. Target auswaschen und Flüssigkeit in die "Heiße Zelle" transferieren (Programm Nr.9)
5. Target trocknen (Programm Nr.10)

Eine genaue Beschreibung der einzelnen Schritte dieser Programme sowie eine Übersichtsskizze aller Leitungen, Ventile, Heizungen und Pumpen ist in Anh.C.

### 2.3.2 Produktion von $^{131}\text{Cs}$

Zur Produktion von  $^{131}\text{Cs}$  müssen folgende Schritte durchgeführt werden.

1. Bevor eine Bestrahlung stattfinden kann, müssen dem Operateur Angaben zur gewünschten Protonenenergie, dem Targetstrom und der Bestrahlungsdauer gemacht werden. Diese werden ihm in Form des Protokolls Nr.1 ("Isotopenproduktion") gegeben, in welches er während der Bestrahlung den Targetdruck und die Targettemperatur einträgt. Diese Daten sind zur späteren Ermittlung der Ausbeute wichtig.
2. Außerdem muß das Target für die Bestrahlung vorbereitet werden, indem das Xenongas von der Vorratsflasche ins Target transferiert wird (Gastransfer). Zuvor sollte jedoch immer erst das Target und das Sicherheitsvolumen evakuiert werden;

dies ist besonders wichtig, wenn zwischen den Bestrahlungen längere Pausen von z.B. mehreren Tagen liegen. Diese beiden Schritte – Evakuieren des Targets und Gastransfer – werden durch Ablauf der beiden Programme Nr.5 und Nr.6 ausgeführt. Wichtige Parameter, wie z.B. Druck und Temperatur von Target und Vorratsflasche, werden im Protokoll Nr.2 ("Targetprogramme") festgehalten.

3. Ist das Target für die Bestrahlung präpariert, kann diese vom Operateur durchgeführt werden.
4. Danach wird das Gas vom Target wieder zurück in die Vorratsflasche transferiert (Programm Nr.7). Alle produzierten, nichtgasförmigen Radionuklide bleiben im Target zurück. Sie werden anschließend mit ca. 250ml reinstem Wasser<sup>1</sup> aus dem Target gespült und mit Helium unter einem Druck von etwa 8 bar über eine Transferleitung aus Edelstahl in die "Heiße Zelle" gedrückt (Programm Nr.9). Abschließend muß das Target wieder getrocknet werden (Programm Nr.10). Beim Ablauf der Programme 7, 9 und 10 werden wieder alle wichtigen Parameter in Protokoll Nr.2 ("Target-Programme") eingetragen.

Zur Bestimmung der Protonenenergie, bei der die Ausbeute an <sup>131</sup>Cs maximal ist, wurden 13 Bestrahlungen à 1 Stunde bei folgenden Energien und Strahlströmen durchgeführt: s.Tab.4.

Es sind auch die Werte von Targetdruck und -temperatur vor Bestrahlungsbeginn aufgeführt, aus denen die Dichte  $\rho$  des Xenongases wie folgt errechnet wurde [29, S.245]:

$$\rho = \rho_n \cdot \frac{p}{p_n} \cdot \frac{T_n}{T} \quad (33)$$

mit:  $\rho_n$  Gasdichte unter Normalbedingungen ( $p_n, T_n$ ): 0,0059 g/cm<sup>3</sup>  
 $p_n = 1$  bar  
 $T_n = 273,15$  K (= 0°C)  
 $p$  Targetdruck [bar]  
 $T$  Targettemperatur [K]

Sie wird später zur Bestimmung des Korrekturfaktors benötigt, mit dem alle Bestrahlungen auf einen Targetdruck von 4 bar und eine Temperatur von 20°C normiert werden (s.Abs.2.3.3).

### 2.3.3 Bestimmung der Aktivität

Die Aktivität der produzierten Radioisotope wurde wie folgt bestimmt.

1. Die aus dem Target in die "Heiße Zelle" gespülte Flüssigkeit wurde in einer 500ml Polyethylenflasche aufgefangen. Die transferierte Menge hing stark von der Pumpleistung ab, so daß die Polyethylenflasche vor und nach dem Flüssigkeitstransfer gewogen wurde. So konnte die Flüssigkeitsmenge genau bestimmt werden.

---

<sup>1</sup>"Millipore-Wasser" der Firma Braun

Nr.	Energie	Strom	Targetdruck	Targettemperatur		Gasdichte
	E [MeV]			I [ $\mu$ A]	p [bar]	
14	24	10	4,28	19,6	292,75	0,02324
15	24	10	4,22	19,8	292,95	0,02290
16	24	10	4,17	20,1	293,25	0,02261
03	26	10	4,40	18,5	291,65	0,02398
04	26	10	4,20	18,3	291,45	0,02291
09	26	10	4,15	20,8	293,95	0,02244
18	26	10	4,19	17,8	290,95	0,02289
06	28	10	4,16	19,0	292,15	0,02264
07	28	10	4,07	19,8	292,95	0,02209
08	28	10	4,16	19,8	292,95	0,02257
10	30	10	4,16	23,6	296,75	0,02229
11	30	10	4,14	20,3	293,45	0,02243
13	30	10	4,29	20,6	293,75	0,02322

Tabelle 4: Bestrahlungsparameter der <sup>131</sup>Cs-Produktion

2. Anschließend wurde die Lösung noch mit etwa 1ml HNO<sub>3</sub> (65%) auf einen pH-Wert von 1 angesäuert [27], da sich sonst ein Teil des Cäsiums an den Gefäßwänden abgesetzt und die Aktivitätsbestimmung verfälscht hätte.
3. Dann wurden 5 Proben à 1ml abpipettiert und in 10ml Glasgläschen gefüllt. Da der Pipettiervorgang sehr ungenau war, wurde auch hier die Flüssigkeitsmenge abgewogen.
4. Die Aktivitäten dieser Proben wurden dann mit einem Reinstgermaniumdetektor gemessen. Dabei wurde über die 667keV- $\gamma$ -Linie die Aktivität des Isotopes <sup>132</sup>Cs bestimmt. Da das Isotop <sup>131</sup>Cs nur Röntgenlinien hat und diese die gleichen sind wie für <sup>132</sup>Cs, mußte hier die zuvor aus der  $\gamma$ -Linie ermittelte Aktivität von <sup>132</sup>Cs abgezogen werden. Falls in der Bestrahlung weitere radioaktive Cäsium-Isotope erzeugt werden, dann müssen auch ihre Aktivitäten aus anderen Linien bestimmt und von denen der Röntgenlinien abgezogen werden.
5. Aus den Aktivitäten der Proben konnte aufgrund des Verhältnisses von Probenvolumen zur gesamten Flüssigkeitsmenge auf die Gesamtaktivität der Bestrahlung geschlossen werden.
6. Dann wurde eine mittlere Aktivität aus den 5 Proben ermittelt, um statistische Unsicherheiten, die durch die Probennahme zustande kommen, abzuschätzen.
7. Außerdem stellte sich heraus, daß die vom Auswertprogramm des Rechners verwendete Detektorausbeutekurve, d.h. die Detektorausbeute in Abhängigkeit von der Energie, für den niedrigen Energiebereich (<30keV) nicht mit der physikalischen Ausbeutekurve übereinstimmt (s.Abb.14). Zur Bestimmung der Aktivität

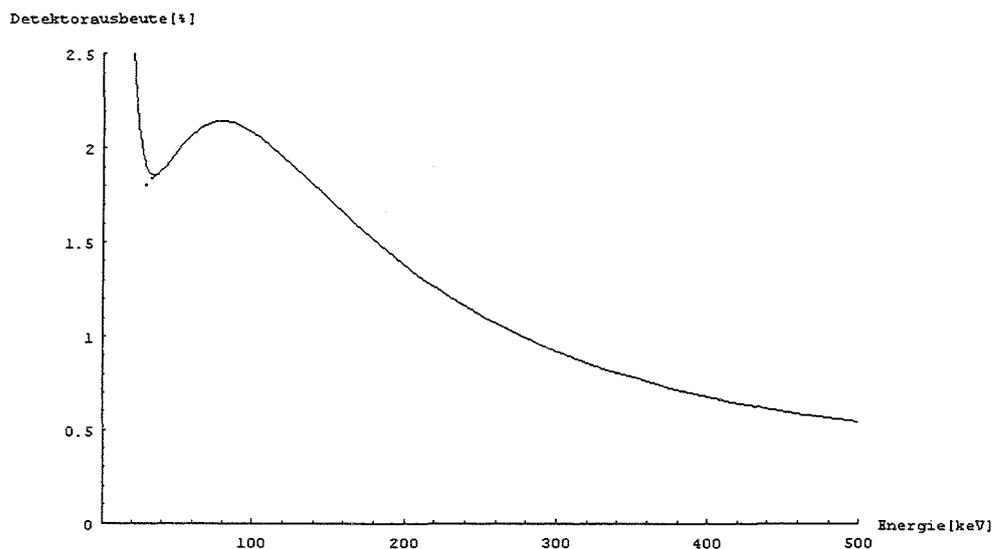


Abbildung 14: Detektorausbeute in Abhängigkeit von der Energie:  
 Kurve: Vom Auswerteprogramm verwendete Ausbeutekurve  
 Punkte: Abgeschätzte Werte der physikalischen Detektorausbeute bei  $E = 29.458 \text{ keV}$   
 und  $E = 33,6 \text{ keV}$

des Radionuklides  $^{131}\text{Cs}$  wurde eine Detektorausbeute zugrunde gelegt, die um den Faktor 1,05 höher ist als die abgeschätzte, physikalische Ausbeute:

Energie [keV]	Ausbeute $\epsilon$		Korrektur- faktor
	verwendete	realistische	
29,458	1,898	1,80	1,05
29,779	1,892	1,80	1,05
33,6	1,857	1,84	1,01

8. Daraufhin wurde die zuvor bestimmte mittlere Aktivität um 5% nach oben korrigiert.

Die Ergebnisse der Aktivitätsmessung einschließlich der Korrektur sind in Tab.5 zusammengefasst.

Für  $^{132}\text{Cs}$  war diese Korrektur nicht notwendig, da dessen Aktivität über die 667,7keV- $\gamma$ -Linie bestimmt wurde. In diesem Energiebereich stimmt die verwendete Detektorausbeute sehr gut mit der physikalischen überein. In Tab.6 ist das Verhältnis von produziertem  $^{132}\text{Cs}$  zu  $^{131}\text{Cs}$

$$R = \frac{\text{Ausbeute } (^{132}\text{Cs})}{\text{Ausbeute } (^{131}\text{Cs})} \quad (34)$$

angegeben, da es für die weitere Verwendung im Massenseparator von Interesse ist. Ein zweites Kriterium für die Wahl der Protonenenergie sollte nämlich sein, den Anteil

Nr.	Energie E [MeV]	Aktivität [MBq]		korr. Aktivität [MBq]
		$^{131}\text{Cs}$	$^{132}\text{Cs}$	$^{131}\text{Cs}$
14	24	148,407 ± 1,554	13,098 ± 0,185	155,827 ± 8,974
15	24	79,772 ± 0,703	6,919 ± 0,148	83,761 ± 7,692
16	24	94,609 ± 1,258	9,287 ± 0,074	99,339 ± 5,988
03	26	157,139 ± 1,702	16,280 ± 0,148	164,996 ± 9,559
04	26	177,785 ± 1,702	18,759 ± 0,074	186,674 ± 10,591
09	26	139,342 ± 1,554	14,171 ± 0,074	146,309 ± 8,521
18	26	170,274 ± 2,331	15,503 ± 0,444	178,788 ± 10,845
06	28	109,853 ± 4,884	13,357 ± 0,370	115,346 ± 10,377
07	28	98,346 ± 1,332	12,728 ± 0,333	103,263 ± 6,249
08	28	117,031 ± 1,073	15,281 ± 0,259	122,883 ± 6,925
10	30	37,296 ± 0,222	8,917 ± 0,148	39,161 ± 2,087
11	30	25,863 ± 0,740	6,105 ± 0,074	27,156 ± 2,033
13	30	62,937 ± 0,333	11,988 ± 0,074	66,084 ± 3,480

Tabelle 5: Gemessene Aktivitäten der  $^{131}\text{Cs}$ -Produktionen (Protonenstrom  $I = 10\mu\text{A}$ , Bestrahlzeit  $t_1 = 1\text{h}$ ) mit einem Reinstgermaniumdetektor und korrigierte Werte aufgrund einer zu hoch angenommenen Detektorausbeute

Nr.	Energie E [MeV]	Ausbeute [MBq/10 $\mu\text{Ah}$ ]		Verhältnis	gemitt. Verhältnis
		$^{131}\text{Cs}$	$^{132}\text{Cs}$	R [%]	$\bar{R}$ [%]
14	24	155,827 ± 8,974	13,098 ± 0,185	8,41 ± 0,50	8,61 ± 0,30
15		83,761 ± 7,692	6,919 ± 0,148	8,26 ± 0,50	
16		99,339 ± 5,988	9,287 ± 0,074	9,35 ± 0,57	
03	26	164,996 ± 9,559	16,280 ± 0,148	9,87 ± 0,58	9,57 ± 0,29
04		186,674 ± 10,591	18,759 ± 0,074	10,05 ± 0,57	
09		146,309 ± 8,521	14,171 ± 0,074	9,69 ± 0,57	
18		178,788 ± 10,845	15,503 ± 0,444	8,67 ± 0,58	
06	28	115,346 ± 10,377	13,357 ± 0,370	11,58 ± 1,09	12,23 ± 0,49
07		103,263 ± 6,249	12,728 ± 0,333	12,33 ± 0,81	
08		122,883 ± 6,925	15,281 ± 0,259	12,44 ± 0,73	
10	30	39,161 ± 2,087	8,917 ± 0,148	22,77 ± 1,27	20,27 ± 0,70
11		27,156 ± 2,033	6,105 ± 0,074	22,48 ± 1,71	
13		66,084 ± 3,480	11,988 ± 0,074	18,14 ± 0,96	

Tabelle 6: Verhältnis der Ausbeute an  $^{132}\text{Cs}$  zu der an  $^{131}\text{Cs}$

Nr.	Energie [MeV]	Ausbeute $^{131}\text{Cs}$ [MBq/10 $\mu$ Ah]	Ausbeute (4bar, 20°C) $^{131}\text{Cs}$ [MBq/10 $\mu$ Ah]	K
14	24	619,957	658,361	1,0619
15		613,148		1,0737
16		607,119		1,0844
03	26	624,898	662,451	1,0601
04		579,718		1,1083
09		584,826		1,1327
18		597,270		1,1091
06	28	476,486	554,232	1,1632
07		460,831		1,2027
08		474,746		1,1674
10	30	314,646	387,964	1,2330
11		317,870		1,2205
13		336,273		1,1537

Tabelle 7: Korrekturfaktoren für die Cs<sup>131</sup>-Produktionen, um die Bestrahlungsergebnisse auf einen Targetdruck von 4bar und eine Temperatur von 20°C zu normieren. (Die Ausbeuten wurden nach Form.23 berechnet.)

von <sup>132</sup>Cs so gering wie möglich zu halten.

Zu jeder Protonenenergie wurden mehrere Bestrahlungen gemacht, bei denen die Werte für Targetdruck und -temperatur unterschiedlich waren (s.Tab.4). Um aus allen Bestrahlungen gleicher Energie den Mittelwert berechnen zu können, werden die bisherigen Ergebnisse noch auf einen Targetdruck von 4bar und eine -temperatur von 20°C normiert. Da diese Parameter die Austrittsenergie der Protonen aus dem Target, E<sub>2</sub>, beeinflussen, und die Aktivität von dieser Energie nicht trivial abhängt (s.Form.23), kann eine Korrektur nur aus den Meßergebnissen nicht vorgenommen werden. Schließlich ist die experimentelle Anregungsfunktion  $\sigma(E)$  nicht bekannt, um den tatsächlichen Energieverlust der Protonen (abhängig von Targetdruck und -temperatur) zu berechnen. Es bietet sich an, die rechnerisch bestimmte Aktivität für 4bar und 20°C mit der rechnerisch bestimmten Aktivität bei den tatsächlichen Targetparametern zu vergleichen. Das Verhältnis der beiden Werte

$$K = \frac{\text{berechnete Aktivität (4bar, 20°C)}}{\text{berechnete Aktivität (p_{real}, T_{real})}} \quad (35)$$

ergibt den Korrekturfaktor. In Tab.7 sind die Korrekturfaktoren für alle 13 Bestrahlungen aufgelistet.

Mit ihnen konnten die Ausbeuten von <sup>131</sup>Cs normiert und aus den Produktionen gleicher Energie eine mittlere Ausbeute an <sup>131</sup>Cs errechnet werden. Die Ergebnisse sind in Tab.8 aufgelistet und in Abb.15 graphisch dargestellt. Eine maximale mittlere Ausbeute an <sup>131</sup>Cs von (183,430 ± 5,373) MBq/10 $\mu$ Ah konnte bei einer Protonenenergie von 26 MeV erzielt werden.

Für die <sup>132</sup>Cs-Ausbeuten konnte diese Normierung nicht vorgenommen werden, da zur

Nr.	Energie E [MeV]	Ausbeute [MBq/10 $\mu$ Ah] (norm. auf 4bar, 20°C)	mittl. Ausbeute [MBq/10 $\mu$ Ah]
14	24	165,473 $\pm$ 9,529	115,319 $\pm$ 4,500
15		89,934 $\pm$ 8,259	
16		107,723 $\pm$ 6,493	
03	26	174,912 $\pm$ 10,133	183,430 $\pm$ 5,373
04		206,891 $\pm$ 11,738	
09		165,724 $\pm$ 9,652	
18		198,294 $\pm$ 12,028	
06	28	134,170 $\pm$ 12,071	133,688 $\pm$ 5,008
07		124,194 $\pm$ 7,516	
08		144,454 $\pm$ 8,084	
10	30	48,286 $\pm$ 2,573	46,353 $\pm$ 1,632
11		33,144 $\pm$ 2,481	
13		76,241 $\pm$ 4,015	

Tabelle 8: Experimentell bestimmte Ausbeuten der  $^{131}\text{Cs}$ -Produktionen

Berechnung des Korrekturfaktors keine geeignete Anregungsfunktion vorlag. Da aber nur das Verhältnis  $R$  von  $^{132}\text{Cs}$  zu  $^{131}\text{Cs}$  interessiert, wird dieses vor Normierung der Ausbeuten berechnet und aus den Produktionen gleicher Protonenenergie wieder ein mittleres Verhältnis  $\bar{R}$  von  $^{132}\text{Cs}$  zu  $^{131}\text{Cs}$  errechnet (s.Tab.6). Bei einer Protonenenergie von 26 MeV betrug das Verhältnis von  $^{132}\text{Cs}$  zu  $^{131}\text{Cs}$  im Mittel  $\bar{R} = (9,6 \pm 0,3) \%$ .

In Tab.9 und in Abb.16 sind die Ergebnisse der rechnerischen und der experimentellen Bestimmung der Ausbeute an  $^{131}\text{Cs}$  über die Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  einander gegenübergestellt. Es wird deutlich, daß die rechnerisch bestimmte Ausbeute etwa um einen Faktor 5 höher ist als die im Experiment bestimmte. Dies könnte mehrere Ursachen haben.

Zum einen kann es sein, daß die zur Ausbeuteberechnung verwendete Anregungsfunktion von  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$ , die aus der Anregungsfunktion der Reaktion  $^{126}\text{Xe}(p,2n)^{125}\text{Cs}$  abgeschätzt wurde, überschätzt worden ist. Dies kann überprüft werden, indem die Anregungsfunktion der (p,2n)-Reaktion an  $^{132}\text{Xe}$  gemessen wird. Diese Messung soll demnächst von einer Gruppe des Forschungszentrums Jülich am Karlsruher Kompaktzyklotron des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt werden, so daß diese Vermutung überprüft werden kann.

Andererseits könnte es sein, daß beim Experiment Faktoren nicht berücksichtigt wurden, die eine Verringerung der Ausbeute zur Folge haben könnten. So ist nicht sicher, ob auch die gesamte im Target produzierte Menge an  $^{131}\text{Cs}$  wirklich ausgewaschen werden konnte. Es ist jedoch nicht anzunehmen, daß sich damit die große Diskrepanz zwischen Experiment und Rechnung erklären läßt. Außerdem könnte es zu einer geringeren Ausbeute gekommen sein, weil Atome des Targetgases während der Bestrahlung aufgrund der Aufheizung aus dem Strahl rausgewandert sind [30], so daß sie für Kern-

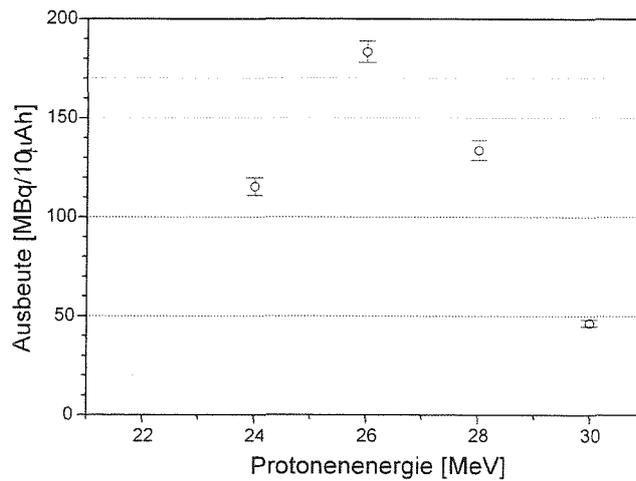


Abbildung 15: Experimentell bestimmte Ausbeute der  $^{131}\text{Cs}$ -Produktionen

Protonenenergie (Zyklotron) [MeV]	Eintrittsenergie $E_1$ [MeV]	Austrittsenergie $E_2$ [MeV]	Ausbeute [MBq/(10µA·h)]	
			Rechnung	Messung
22	20,996	12,453	573,772	–
24	23,064	15,372	658,361	115,319 ± 4,500
26	25,123	18,086	662,451	183,430 ± 5,373
28	27,173	20,663	554,232	133,688 ± 5,008
30	29,218	23,145	314,646	46,353 ± 1,632

Tabelle 9: Berechnete und gemessene Ausbeuten der Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  für Protonenenergien zwischen 22 und 30 MeV

reaktionen nicht mehr zur Verfügung standen. Aber auch dieser Effekt kann nicht den großen Unterschied zwischen gemessener und berechneter Ausbeute erklären. Es ist also anzunehmen, daß der maßgebliche Fehler aus der Überschätzung der Anregungsfunktion von  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  kommt.

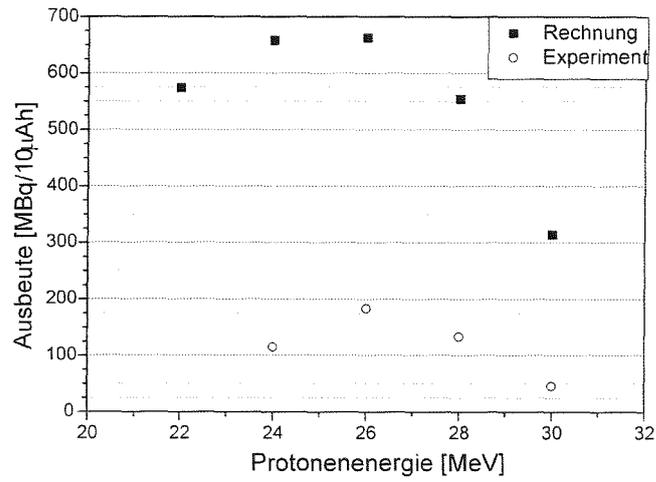


Abbildung 16: Berechnete und gemessene Ausbeuten der Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  für Protonenenergien zwischen 22 und 30 MeV

### 3 Implantation von $^{133}\text{Cs}$ in Stents

Der Massentrenner wird zum einen zur Implantation des Cäsiums in den Stahl-Stent verwendet. Die andere Aufgabe wird jedoch später sein, das ebenfalls im Zyklotron produzierte Radioisotop  $^{132}\text{Cs}$  vom  $^{131}\text{Cs}$  abzutrennen, da es eine therapeutisch nicht erwünschte  $\gamma$ -Linie bei 667,6 keV besitzt und deshalb nicht in den Stent implantiert werden darf. Bevor nun das produzierte Radioisotop  $^{131}\text{Cs}$  in den Stent eingebracht wird, soll der Implantationsprozeß zunächst mit dem nicht-aktiven Cäsium-Isotop  $^{133}\text{Cs}$  optimiert werden. Dazu wurde, anstelle des in Wasser gelösten  $^{131}\text{Cs}$  aus dem Target, das Salz  $\text{CsJ}$  in entmineralisiertem Wasser gelöst und verwendet.

#### 3.1 Experimenteller Aufbau der Implantationsanlage

Der Implanter besteht aus einer Ionenquelle, einem Ablenkmagneten, einer Einzellinse, sowie einer Implantationskammer. Eine Übersichtsskizze der Anordnung ist in Abb.17 zu sehen. Nachfolgend sollen die einzelnen Komponenten näher erläutert werden.

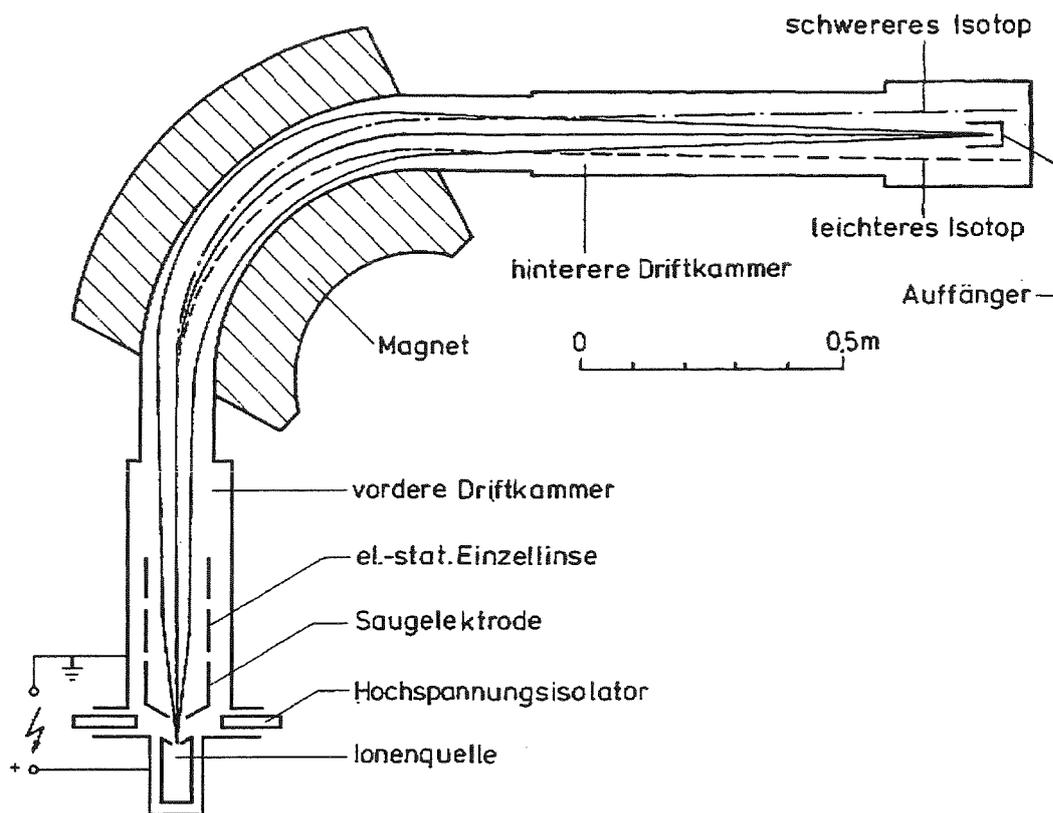


Abbildung 17: Übersichtsskizze des Massenseparators, der zur Implantation von  $^{133}\text{Cs}$  und  $^{131}\text{Cs}$  in Stents verwendet wurde

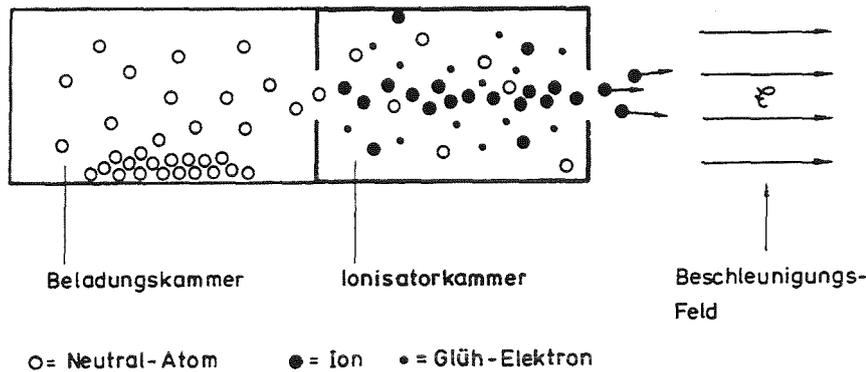


Abbildung 18: Prinzip einer Oberflächenionisationsquelle [16]

### 3.1.1 Ionenquelle

Die verwendete Ionenquelle basiert auf dem Prinzip der Oberflächenionisation (Oberflächenionisationsquelle). Sie eignet sich besonders zur Ionisation von Alkalimetallen, da diese nur eine geringe erste Ionisierungsenergie haben (Rb: 4,2 eV, Cs: 3,9 eV). Das Prinzip der Oberflächenionisation ist in Abb.18 dargestellt.

Die Quelle besteht aus einer Beladungs- und einer Ionisatorkammer, welche durch eine Öffnung miteinander verbunden sind. Nachdem die zu ionisierenden Atome in die Beladungskammer eingebracht worden sind, wird zunächst die Ionisatorkammer und dann die Beladungskammer auf Temperaturen von ca. 2400K geheizt. Dies geschieht über Elektronenstoß. Eine um den Ionisator gewickelte Heizwendel aus Tantal, die gegenüber dem Ionisator auf negativem Potential liegt ( $\Delta U = 660V$ ), wird von einem Strom durchflossen ( $I_{\text{Heizung}} = 90 - 100A$ ), woraufhin Elektronen emittiert und zum Ionisator hin beschleunigt werden. Durch den Elektronenbeschuß heizt sich die Ionisationskammer auf, die thermisch leitend mit der Beladungskammer verbunden ist. Wenn sich auch diese aufheizt, gehen die Atome in den gasförmigen Zustand über und breiten sich in Beladungs- und Ionisationskammer aus. Letztere besteht aus einem Hohlzylinder, dessen Innenfläche aus Wolfram besteht. Treffen die Gasatome auf die heiße Wolfram-Fläche auf, werden sie ionisiert. Da die Ionisatorkammer nach vorne noch eine Öffnung zur Absaugelektrode hat und die Ionenquelle gegenüber dieser auf +55kV liegt, werden die erzeugten Ionen aus dieser Öffnung in die Strahlführung des Massentrenners beschleunigt. Es handelt sich dabei hauptsächlich um  $Cs^+$ -Ionen sowie auch um einige  $K^+$ - und  $Na^+$ -Ionen.

### 3.1.2 Ablenkmagnet und elektrostatische Einzellinse

Um die Ionen nach ihrem Masse-Ladungs-Verhältnis ( $m/q$ ) zu selektieren, müssen sie, nachdem sie im elektrischen Feld beschleunigt wurden, noch ein Magnetfeld durchlaufen. In diesem Fall ist das ein Sektormagnet mit Kantenfokussierung (s.Abb.19), der neben seinen filternden Eigenschaften doppelfokussierend wirkt. Im Magneteten beschreibt ein Ion mit Masse  $m$  und Ladung  $q$  eine Flugbahn mit Krümmungsradius  $r$ .

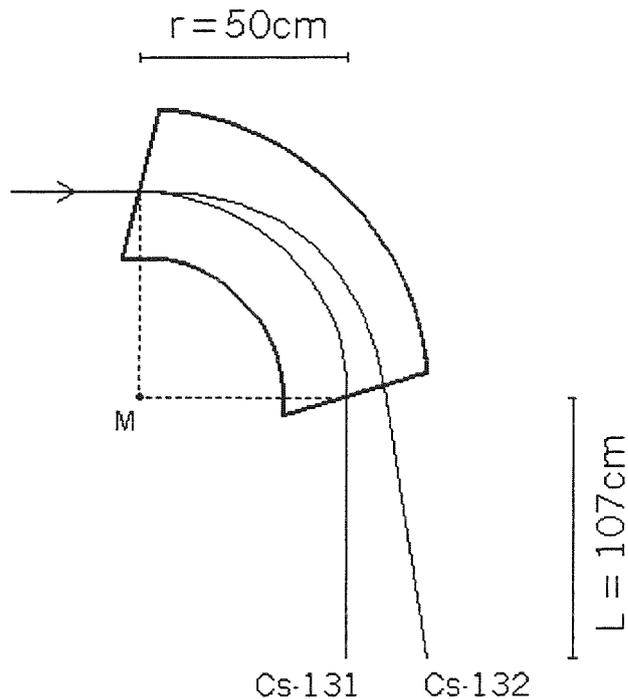


Abbildung 19: Skizze des im Implanter verwendeten Sektormagneten

Dieser hängt von der magnetischen Induktion  $B$ , der Beschleunigungsspannung  $U$  und dem Masse-Ladungs-Verhältnis  $m/q$  ab. Zur Herleitung der Formel wird berücksichtigt, daß das Ion seine kinetische Energie durch Beschleunigung im elektrischen Feld erhält

$$\frac{mv^2}{2} = q \cdot U \quad (36)$$

und im Magnetfeld aufgrund von Lorentz- und Fliehkraft eine Kreisbahn mit Radius  $r$  beschreibt

$$\frac{mv^2}{r} = q \cdot v \cdot B \quad (37)$$

Daraus ergibt sich für den Krümmungsradius der Flugbahn

$$r = \frac{1}{B} \sqrt{2U \frac{m}{q}} \quad (38)$$

Sind Beschleunigungsspannung und Magnetfeld gerade so eingestellt, daß Eintritts- und Austrittsstrahl orthogonal zueinander sind, dann beträgt der Krümmungsradius  $r=50\text{cm}$  (s.Abb.19).

Außerdem kann der Strahl noch mit einer zwischen Ionenquelle und Magnet eingebauten elektrostatischen Einzellinse fokussiert werden. Sie besteht aus drei hintereinander angeordneten Hohlzylindern. Die zwei äußeren Kathoden liegen auf Masse und die innere sollte optimalerweise an eine Spannung  $U_{EL}$  angeschlossen werden, die 48 - 54% der Beschleunigungsspannung  $U_{HV}$  beträgt [31].

### 3.1.3 Implantationskammer und Wobbler

Der zu implantierende Stent (  $\varnothing$  1,5mm, Länge 18,9mm) wird auf eine Edelstahl-nadel (  $\varnothing$  1mm) aufgezogen (s.Abb.20), die dann – mit dem dicken Ende nach unten – in die

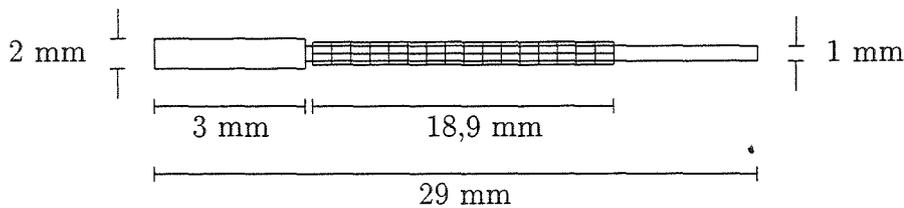


Abbildung 20: Schematische Darstellung der Stentnadel mit Stent

Stenthalterung (s.Abb.21) eingespannt wird. Davor befindet sich in Höhe des Stents eine Blende mit einer rechteckigen Öffnung von 20mm Höhe und 5mm Breite. Das Blendenpotential liegt auf -30V, weil sie das Austreten von Sekundärelektronen aus Stent und Nadel während der Bestrahlung unterdrücken soll. Hinter dem Stent ist ein Faraday-Cup aus Aluminium angebracht, der zur Messung des Strahlstroms dient. Dazwischen befinden sich zwei Pins, die zum Einstellen des "Wobblers" gebraucht werden. Dieser besteht aus zwei gegenüberliegenden Ablenkplatten, die den Strahl nach oben und unten ablenken können. Schließt man an die Platten eine Dreiecksspannung mit einem Spitze-zu-Spitze-Wert von  $U_{wob-ss} = 700$  an, so wird der Strahl immer wieder von unten nach oben über den Stent gestrichen. Zusätzlich wurde noch eine Offset-Spannung von  $U_{wob-offset} = -30$  V angelegt. Dies sind allerdings nur Richtwerte, da der Wobbler nach jedem Hochfahren des Implanters neu eingestellt wurde. Damit das Cäsium in die gesamte Stent-Oberfläche implantiert wird, ist an die Stenthalterung ein Drehmotor angeschlossen, so daß sich der Stent während der Bestrahlung langsam um seine Achse drehen kann. Um eine homogene Implantation zu erreichen, wurde die Wobblerfrequenz auf 5 Hz und die des Drehmotors auf etwa 0,02 Hz eingestellt.

### 3.1.4 Vakuumsystem

Abschließend sollen noch ein paar Worte zum Vakuumsystem des Implanters gesagt werden, da es für die späteren Ergebnisse von erheblicher Bedeutung ist.

Der Massenseparator ist durch ein Trennventil, welches sich direkt vor dem Magneten befindet, in zwei Teile geteilt – einen vorderen und einen hinteren. Beide Teile werden von je einer Öldiffusionspumpe be-pumpt. Da diese nicht bei Atmosphärendruck, sondern erst ab Drücken im Bereich von  $10^{-2}$ mbar betrieben werden dürfen,

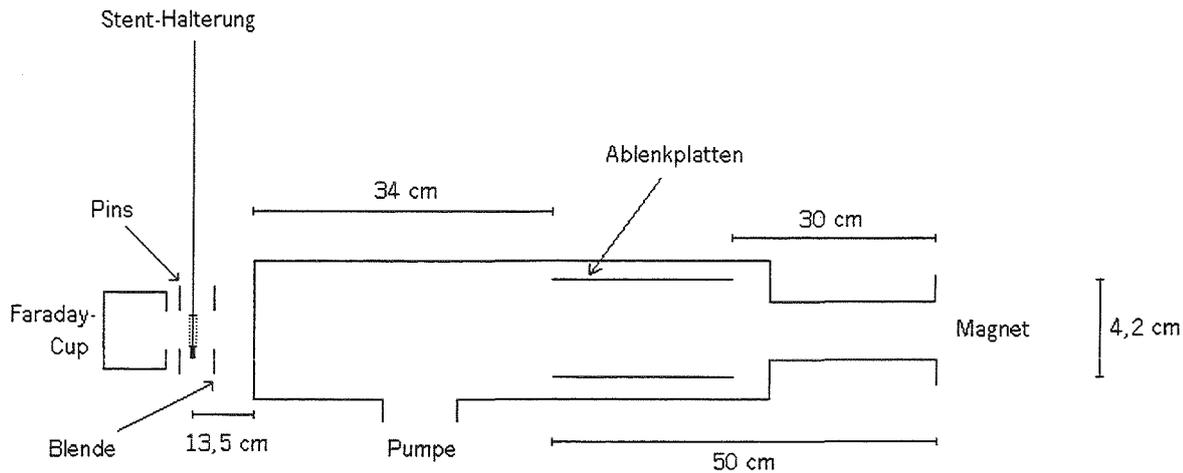


Abbildung 21: Schematische Darstellung des hinteren Teils des Massentrenners (nach dem Sektor-Magnet)

ist eine Drehschieberpumpe als gemeinsame Vorpumpe vorgeschaltet. Für den Fall, daß der Massentrenner belüftet werden muß, besteht die Möglichkeit mit einer zweiten Drehschieberpumpe ein Vorvakuum von  $2 \cdot 10^{-2}$  mbar zu erzeugen, bevor die Diffusionspumpen weiterpumpen können. Sie sollten immer eine Vorlaufzeit von mindestens einer halben Stunde haben, um ihre Arbeitstemperatur zu erreichen und den Austritt von Öldämpfen zu minimieren. Diese enthalten nämlich Kohlenwasserstoffe, die die Probe kontaminieren und somit die Implantationseigenschaften erheblich verändern können.

### 3.2 Materialzusammensetzung der verwendeten Stents

Bei den implantierten Stents handelt es sich um BX18-Stents der Firma ISOSTENT. Eine rasterelektronenmikroskopische Aufnahme (REM-Aufnahme) des 18,9mm langen Stents, der im nicht expandierten Zustand einen Durchmesser von 1,5mm hat, ist in Abb.22 gezeigt.

Er besteht aus rostfreiem Stahl der amerikanischen Norm 316L. Aus dem Stahlschlüssel [32, S.441] ergibt sich eine Dichte von

$$\rho_{\text{Stent}} = 7,596 \text{ g/cm}^3$$

bei folgender Materialzusammensetzung:

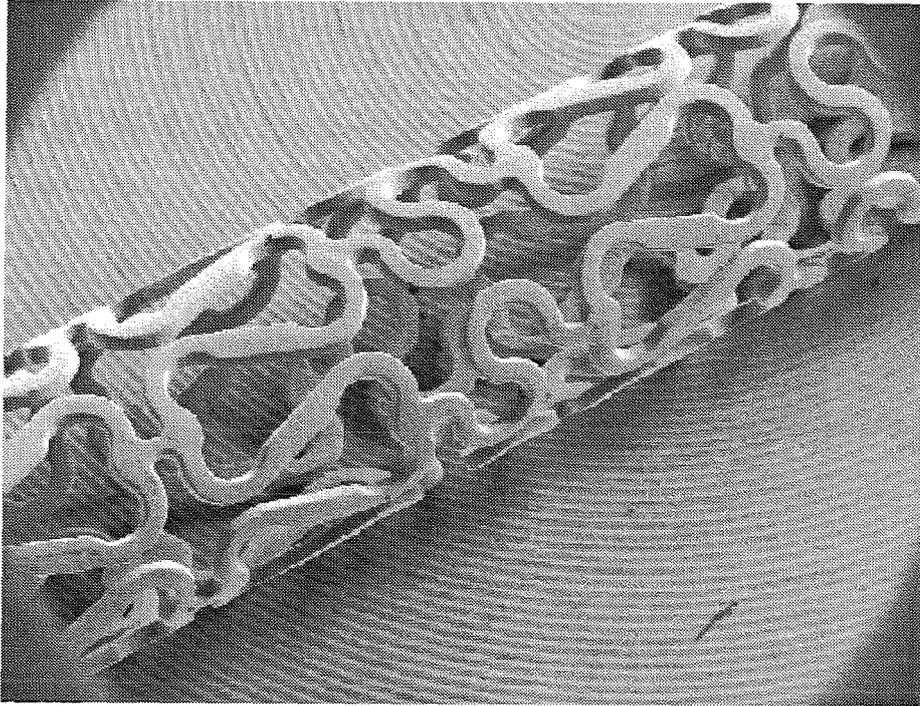


Abbildung 22: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme (REM-Aufnahme) eines BX18-Stents der Firma ISOSTENT)

Element	Anteil in Atom%	Anteil in Gewichts%
$^{26}\text{Fe}$	68,5	67,67
$^{26}\text{Ni}$	10,0 - 14,0 <sup>2</sup>	12,46
$^{24}\text{Cr}$	16,0 - 18,0	15,63
$^{42}\text{Mo}$	2,0 - 3,0	4,24
$^6\text{C}$	$\leq 0,03$	
$^{14}\text{Si}$	$\leq 1,00$	
$^{25}\text{Mn}$	$\leq 2,00$	
$^{15}\text{P}$	$\leq 0,045$	
$^{16}\text{S}$	$\leq 0,030$	

Damit der Stahl plastisch formbar und somit ballonexpandierbar ist, soll sein Gehalt an Kohlenstoff so gering wie möglich sein. Da Kohlenstoff den Stahl spröde macht, darf durch die Cäsium-Implantation kein zusätzlicher Kohlenstoff in den Stent gelangen. Diese wichtige Tatsache wird später noch von Bedeutung sein.

<sup>2</sup>Zur Dichteberechnung wurde der Mittelwert genommen.

### 3.3 Vorbereitungen der Implantation

#### 3.3.1 Präparation der Stents

Vor der Cäsium-Implantation wurden die Stents folgender Waschprozedur unterzogen:

1. 10min im Ultraschallbad mit Aceton bei 42°C
2. 10min im Ultraschallbad mit 0,9% NaCl<sup>3</sup> bei 42°C
3. einige Minuten in entmineralisiertem Wasser<sup>4</sup> spülen
4. 10min im Ultraschallbad mit Ethanol bei 42°C

Das Acetonbad soll möglichst alle organischen Verbindungen wie z.B. Fette entfernen. Außerdem soll vor der Ionenimplantation alles vom Stent entfernt werden, was später auch im Blut ausgewaschen werden würde. Dies wird durch ein Ultraschallbad in isotonischer Kochsalzlösung realisiert. Damit keine NaCl-Kristalle auf dem Stent zurückbleiben, wird er danach einige Minuten in Wasser für Injektionszwecke gespült. Zum Schluß wird er noch in Ethanol "gebadet", um ihn sauber zu machen und jegliche Wasserreste zu vertreiben.

Vor Beginn der Implantationen wurden zunächst rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen der Stents gemacht, um sicherzugehen, daß das Waschverfahren auch keine Rückstände hinterläßt, die bei der Ionenimplantation Probleme bereiten könnten. Dabei stellte sich heraus, daß das Spülen der Stents in entmineralisiertem Wasser – nach dem Ultraschallbad in 0,9% NaCl – nicht die erwünschte Wirkung hatte. Man sieht in Abb.23, daß der Stent mit NaCl-Kristallen übersät ist. Nachgewiesen wurde das über eine EDX-Analyse. Salzrückstände wurden bei allen untersuchten Stents gefunden – mal mehr mal weniger. Daraufhin wurde die Waschprozedur geändert und die Stents zum Spülen mit entmineralisiertem Wasser ebenfalls in ein Ultraschallbad gegeben. Nach der Implantation von Cäsium wurde jeder Stent nochmal für 15 Minuten bei 42°C im Ethanol-Ultraschallbad gereinigt.

#### 3.3.2 Voreinstellungen am Implanter

Bevor mit der eigentlichen Implantation begonnen werden konnte, mußten einige Vorbereitungen getroffen werden:

- Einschalten des Kühlwasser-Kreislaufes, sonst läßt sich die Hochspannung nicht einschalten.
- Einschalten der Versorgungsspannung des Ablenkmagneten
- Einschalten der Hochspannungen: Beschleunigungsspannung ( $U_{HV}$ ) und Einzel-linsenspannung ( $U_{EL}$ )

---

<sup>3</sup>isotonische Kochsalzlösung

<sup>4</sup>"Aqua ad iniectabilia" der Firma Braun

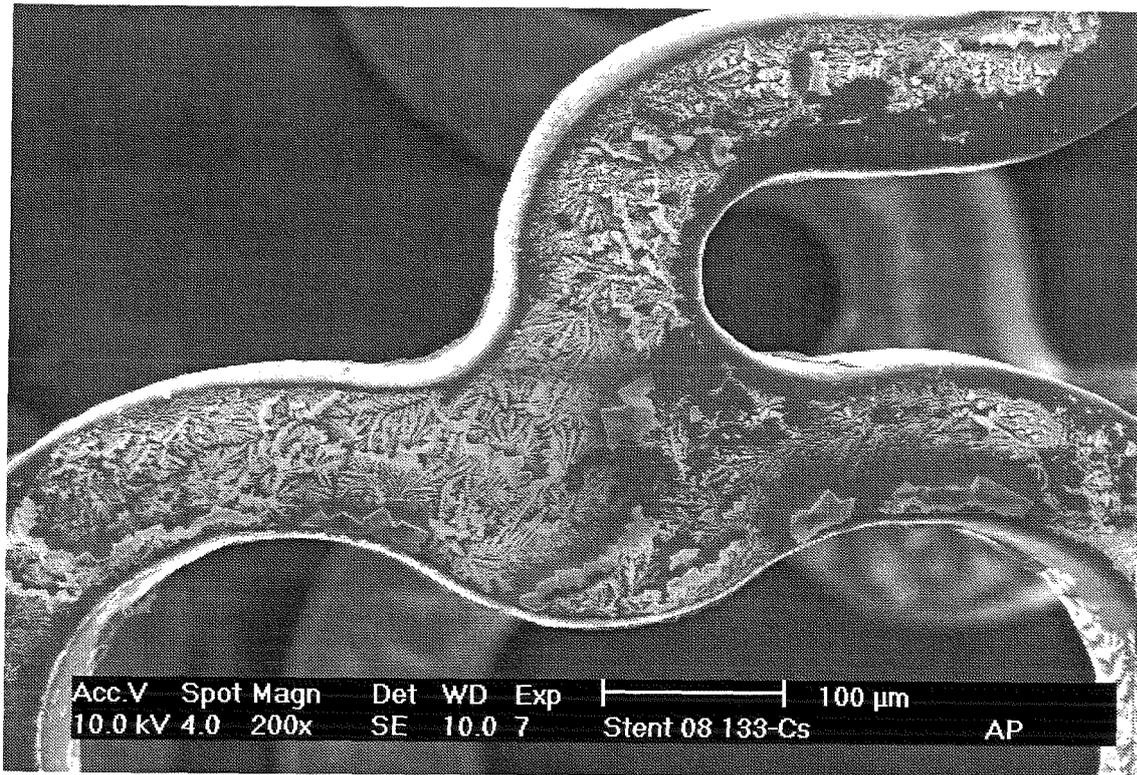


Abbildung 23: REM-Aufnahme eines Stents, der den Waschschritten Nr.1 bis Nr.3 unterzogen wurde. Die Kristall-Strukturen sind mit EDX nachgewiesene NaCl-Kristalle.

- Hochheizen der Ionenquelle: Der Strom ( $I_{heiz}$ ) durch die Heizwendel, welche um den Ionisator gewickelt ist, wird langsam auf 90 bis 100 A hochgefahren. Dabei darf der Heizelektronenstrom, also die von der Heizkathode emittierten Elektronen, die den Ionisator durch Stoß aufheizen, nicht größer als 330 mA werden.
- Der Beamstop, der zwischen Einzellinse und Ablenkmagnet sitzt, wird zur Messung des Gesamtionenstroms ( $I_{BS}$ ) kurzzeitig in den Strahl eingefahren.
- Der Magnet wird hochgefahren und so eingestellt, daß am Faraday-Cup der  $^{133}\text{Cs}$ -Strom ( $I_{Alu}$ ) gemessen wird.
- Auf der Blende (s.Abb.21) kann der Strom  $I_B$  gemessen werden, der nicht durch das Eintrittsfenster in die Implantationskammer gelangt. Man kann an die Blende aber auch eine Vorspannung ( $U_B$ ) anlegen. Dies wurde auch gemacht, um zu sehen, ob die Spannung einen Einfluß auf den Implantationsprozeß hat.
- Eine Stent-Nadel wird zunächst ohne Stent in den Strahl gebracht, um den Magneten feinzuzustieren. Später, wenn der Stent leitend auf die Nadel aufgezogen ist, wird der  $^{133}\text{Cs}$ -Strom ( $I_{Stent}$ ) an einen Integrator angeschlossen, um die Anzahl der implantierten Ionen zu zählen. Natürlich werden nicht nur Ionen gezählt, die in den Stent implantiert werden, sondern auch die, die in der Nadel gestoppt

werden. Deshalb wurde zuvor die Flächenbelegung des Stents bestimmt, d.h. der Flächenanteil, den der Stent von der Nadel abdeckt. Die zu 31,5% ermittelte Flächenbelegung ist dann auch der Anteil des Stentnadelstroms ( $I_{Stent}$ ), der durch die in den Stent eintretenden Ionen zustande kommt. Dies hat aber nur Gültigkeit, wenn aus Stent und Stentnadel keine Sekundärelektronen austreten, da diese einen Beitrag an positiven, eintretenden Ionen vortäuschen und somit die Dosis der Cs-Atome verfälschen.

- An die Ablenkplatten (s.Abb.21) wird eine Gleichspannung als Offset ( $U_{wob-offset}$ ) und eine Rampen-Spannung ( $U_{wob-ss}$ ), deren Größe immer von Spitze zu Spitze angegeben wird, so angeschlossen, daß an den Pins gerade ein Strom gemessen wird (Einstellung des Wobblers).

### 3.4 Implantation von $^{133}\text{Cs}$ in Stents

#### 3.4.1 Definition und Bestimmung von Fluenz und Dosis

Bei der Ionenimplantation sind die Parameter Fluenz und Dosis von elementarer Bedeutung. Deshalb sollen sie kurz erläutert werden.

In der Literatur werden diese Begriffe meist äquivalent verwendet und sind definiert als Quotient aus Stromintegral und Flächeneinheit [33]

$$\text{Dosis (Fluenz)} = \frac{\int I dt}{meA} \quad \text{Atome / cm}^2 \quad . \quad (39)$$

mit:

I	Strahlstrom
t	Zeit
m	Ladungszustand des Ions
e	Elementarladung
A	Fläche, über die der Strom gemessen wird

Im folgenden werden die beiden Begriffe jedoch unterschieden.

Mit **Fluenz F** wird das Integral des Strahlstroms pro Probenfläche A bezeichnet

$$F \left[ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2} \right] = \frac{\int I dt}{meA} \quad . \quad (40)$$

Die **Dosis D** hingegen ist die Gesamtzahl der tatsächlich in die Probenfläche A implantierten Atome  $N_{atom}$

$$D \left[ \frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2} \right] = \frac{N_{atom}}{A} \quad , \quad (41)$$

welche mit Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (s.Anh.D.2) gemessen wurde (s.Abb.24).

Die erste Schwierigkeit besteht darin die Fluenz korrekt anzugeben.

Falls der Cäsium-Strom stabil ist und der Strahl die ganze Blende abdeckt, kann die Fluenz aus dem Strom am Faraday-Cup  $I_{Alu}$  – natürlich bei nichteingefahrener Stentnadel – und der Bestrahlzeit t bestimmt werden.

$$F = \frac{I_{Alu} \cdot t}{e \cdot 1\text{cm}^2} \quad , \quad (42)$$

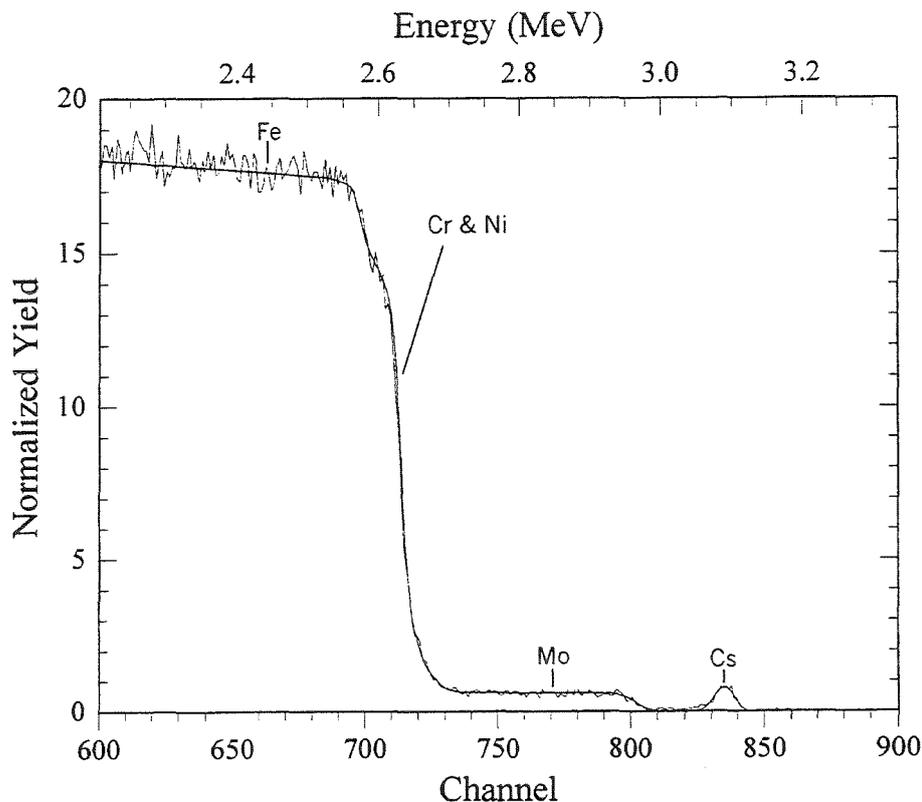


Abbildung 24: RBS-Spektrum eines mit  $^{131}\text{Cs}$  implantierten Stents

wobei die Öffnung der Blende  $1\text{cm}^2$  beträgt. Da der Stent sich während der Bestrahlung allerdings um seine Achse dreht, ist die Fluenz bezüglich des Stents

$$F_{\text{stent}} = \frac{I_{\text{Alu}} \cdot t}{\pi e \cdot 1\text{cm}^2} \quad (43)$$

um den Faktor  $\pi$  kleiner, als die Fluenz  $F$ . Deshalb muß im folgenden die Fluenz  $F_{\text{stent}}$  verwendet werden.

Nun war der Strahlstrom bei längeren Implantationen nicht immer stabil, so daß ein Mittelwert für den Strom am Alu-Cup genommen wurde. Während der Implantation wurde die Bestrahlung also ein paar Mal unterbrochen, um den Alu-Cup-Strom  $I_{\text{Alu}}$  – natürlich ohne Stentnadel – zu messen. Hinzu kommt, daß der Strahl bei späteren Implantationen mit höherer Einzellinsenspannung  $U_{EL}$  so gut fokussiert wurde, daß er eventuell nicht mehr die ganze Blendenbreite ausgefüllt hat. Dies war aber bei der Ermittlung der Fluenz vorausgesetzt worden, denn es wurde angenommen, daß die Strahlfläche des gewobbelten Strahls  $1\text{cm}^2$  beträgt. In diesem Fall ist natürlich auch eine genaue Einstellung des Magneten sowie ein stabiler Magnetstrom sehr wichtig. Bei längeren Implantationen ist der Magnet allerdings immer etwas gedriftet, so daß er manchmal nachgeregelt werden mußte. Dies wurde aber meist nicht sofort bemerkt, da es schließlich auch sein kann, daß der Strahlstrom geringer wird, weil die Ausbeute

der Ionenquelle abnimmt. Die angegebenen Fluenzen sind also immer unter Berücksichtigung dieser Faktoren zu sehen.

Eine zweite Möglichkeit, die Fluenz zu messen, wäre die Integration des Stentnadelstroms  $I_{stent}$  unter Berücksichtigung, daß der Stent eine Flächenbelegung von 31,5 % hat, d.h. daß er 31,5 % der Mantelfläche eines vergleichbaren Zylinders abdeckt. Die Bestimmung über den Stentnadel-Strom ist aber nur dann richtig, wenn zum Strom nur positive Cs-Ionen beitragen und implantierte Cäsiumatome nicht wieder aus dem Stent gesputtert werden. Kommt es nämlich durch den Ionenbeschuß zum Austritt von Sekundärelektronen aus Stent und Nadel, wird ein höherer Ionenstrom vorgetäuscht und damit eine geringere Dosis implantiert als sich aus der Fluenz ergibt. Außerdem wird bei der Strommessung über die Stentnadel nicht berücksichtigt, daß neutrale Cäsiumatome nach ihrer Implantation durch einfallende Cäsiumionen weggesputtert werden können. Beide Effekte können nur schwer abgeschätzt werden und sollten deshalb so klein wie möglich gehalten werden.

Da außerdem die Strommessung an solch einer unregelmäßigen Oberfläche wie die von Stentnadel mit Stent nicht sehr genau ist, am Faraday-Cup der Strahlstrom jedoch sinnvoll gemessen werden kann, wird die Fluenz aus dem Integral des Faraday-Cup-Stroms bestimmt.

Mit Hilfe der RBS-Messungen wurde ein Umrechnungsfaktor UF bestimmt, indem der Quotient aus implantierter Dosis D und Fluenz F gebildet wurde:

$$UF = \frac{\text{Dosis}}{\text{Fluenz}} \quad (44)$$

Mit diesem Umrechnungsfaktor konnte dann für die Implantationen, die nicht mit RBS untersucht wurden, eine Dosis abgeschätzt werden.

Vier Stents wurden mit Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie untersucht, zwei von H. Baumann am Institut für Kernphysik der Universität Frankfurt und die anderen zwei von R. Fromknecht am Institut für nukleare Festkörperphysik des Forschungszentrum Karlsruhe.

Zunächst sind die Parameter der Cäsiumimplantation für die Stents in Tab.10 aufgelistet. Mit RBS wurde für alle Stents die  $^{133}\text{Cs}$ -Dosis gemessen; für den Stent Nr. 090300-5 wurden zusätzlich noch die  $^{12}\text{C}$ - und  $^{16}\text{O}$ -Dosen ermittelt (s.Tab.11). Zusammen mit den Fluenzen  $F_{stent}$  aus Tab.10 konnte aus den Dosen der Umrechnungsfaktor UF berechnet werden. Er ist in Tab.11 aufgeführt. Aus den Messungen geht hervor, daß die Dosis D für die Stents, die bei geringem Strahlstrom implantiert wurden ( $<1\mu\text{A}/\text{cm}^2$ ), um einen Faktor 3 bis 3,5 kleiner ist als die Fluenz, die aus dem Faraday-Cup-Strom  $I_{Alu}$  berechnet wurde. Für den Stent, der bei einem Strahlstrom von  $6\mu\text{A}$  implantiert wurde, ist die Dosis nur um einen Faktor 2,3 kleiner als die Fluenz. Dieser Unterschied zwischen Fluenz und Dosis läßt sich wohl hauptsächlich durch austretende Sekundärelektronen erklären, die nicht unterdrückt worden sind. Dies könnte man erreichen, indem vor dem Faraday-Cup eine Gegenelektrode, die auf etwa  $-100\text{ V}$  gelegt wird, angebracht wird. Außerdem sind in der Fluenz keine Cäsium-Atome berücksichtigt, die nach ihrer Implantation wieder herausgesputtert werden. Wahrscheinlich trägt die Zahl der gesputterten Cäsiumatome nicht wesentlich zur Diskrepanz von Fluenz und Dosis bei, dieser Effekt soll jedoch erwähnt werden, da er für große Ionendosen relevant wird.

Implantationsparameter	Stent-Nr.			
	021299-3	090300-5	080500-5	080500-6
Datum	02.12.99	24.3.00	10.05.00	10.05.00
Uhrzeit	13 <sup>02</sup> - 14 <sup>21</sup>	17 <sup>54</sup> - 18 <sup>06</sup>	13 <sup>50</sup> - 16 <sup>45</sup>	17 <sup>13</sup> - 20 <sup>04</sup>
Bestrahlungsdauer [min]	79	12	175	171
Beschleunigungsspannung $U_{HV}$ [kV]	55	55	55	55
Einzellinsenspannung $U_{EL}$ [kV]	17	17	17	17
Dreiecksspannung $U_{wob-ss}$ [V]	664	700	670	670
Offsetspannung $U_{wob-offset}$ [V]	+15	+4	-39	-39
Wobblersfrequenz $\nu_{wob}$ [Hz]	5	5	5	5
Blendenvorspannung $U_B$ [V]	-30	-30	-30	-
Beamstopstrom $I_{BS}$ [ $\mu$ A]	6,25	47	2,2	2,2
Alu-Cup-Strom $I_{Alu}$ [ $\mu$ A]	0,8	6,2	0,4	0,6
Stentnadelstrom $I_{Stent}$ [ $\mu$ A]	1,1	4,4	0,5	0,7
Fluenz $F_{stent}$ [Ionen/cm <sup>2</sup> ]	$7,5 \cdot 10^{15}$	$8,9 \cdot 10^{15}$	$8,3 \cdot 10^{15}$	$1,22 \cdot 10^{16}$

Tabelle 10: Implantationsparameter der mit RBS untersuchten Stents Nr. 021299-3, 090300-5, 080500-5 und 080500-6

	Stent-Nr.			
	021299-3	090300-5	080500-5	080500-6
<sup>133</sup> Cs-Dosis [Atome/cm <sup>2</sup> ]	$2,5 \cdot 10^{15}$	$3,9 \cdot 10^{15}$	$2,5 \cdot 10^{15}$	$3,5 \cdot 10^{15}$
<sup>12</sup> C-Dosis [Atome/cm <sup>2</sup> ]	-	$7,0 \cdot 10^{15}$	-	-
<sup>16</sup> O-Dosis [Atome/cm <sup>2</sup> ]	-	$20,0 \cdot 10^{15}$	-	-
Umrechnungsfaktor UF	0,332	0,440	0,300	0,286
1/UF	3,0	2,3	3,3	3,5

Tabelle 11: Mit Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie gemessene Dosen der Stents Nr. 021299-3, 090300-5, 080500-5 und 080500-6 sowie die daraus errechneten Umrechnungsfaktoren UF

Bestrahlparameter	Stent-Nr. 041099-9
Datum	05.10.99
Uhrzeit	14:03 - 14:36
Bestrahlungsdauer	33 min
Beschleunigungsspannung $U_{HV}$	55 kV
Einzellinsenspannung $U_{EL}$	-
Rampenspannung $U_{wob-ss}$	680 V
Offsetspannung $U_{wob-offset}$	+74 V
Wobblersfrequenz $\nu_{wob}$	10 Hz
Blendenvorspannung $U_B$	-
Beamstopstrom $I_{BS}$	25,5 $\mu$ A
Alu-Cup-Strom $I_{Alu}$	1,4 $\mu$ A
Stentnadelstrom $I_{stent}$	3,0 $\mu$ A
Fluenz $F_{stent}$ [Ionen/cm <sup>2</sup> ]	$5,5 \cdot 10^{15}$
Dosis $D$ [Atome/cm <sup>2</sup> ]	$1,8 \cdot 10^{15}$

Tabelle 12: Implantationsparameter des Stents Nr. 041099-9

### 3.4.2 <sup>133</sup>Cs-Implantationen mit anschließender Auger-Spektroskopie

Obwohl einige Stents mit <sup>133</sup>Cs implantiert wurden, konnten nur die fünf mit den Nr. 041000-9, 090300-4, 080500-1, 080500-2 und 080500-3 sowie ein nicht implantierter Stent mit der Nr. 090300-1 mit Auger-Spektroskopie (s.Anh.D.1) untersucht werden, da die Messungen in Auftrag gegeben werden mußten und recht zeitaufwendig waren. Die Auger-Spektroskopie des Stents Nr.041000-9 wurde über die Firma ISOSTENT von einem amerikanischen Labor durchgeführt, während die anderen fünf Stents von E. Nold am Institut für Materialforschung I des Forschungszentrums Karlsruhe untersucht wurden.

#### 1. Implantation

Stent Nr.041099-9 war einer der ersten mit <sup>133</sup>Cs implantierten Stents. Er ist als Teststent für die spätere Implantation von <sup>131</sup>Cs an ISOSTENT geschickt worden, um Materialuntersuchungen durchführen zu lassen. Es mußte nämlich zunächst einmal abgeklärt werden, daß es durch die Implantation von Cäsium-Atomen nicht zu Änderungen der Materialparameter der Stents wie z.B. Korrosionsverhalten oder Härte kommt. Der Stent wurde unter den in Tab.12 angegebenen Implantationsbedingungen bestrahlt.

Die Ergebnisse der Auger-Spektroskopie von ISOSTENT ergaben eine maximale Cäsium-Konzentration von 2 Atomprozent in einer Tiefe von 10nm (s.Abb.25). Mit einer Simulationsrechnung (TRIM-Programm) wurde eine theoretische Implantationstiefe von 12,6 nm berechnet (s.Abs.3.5), wobei allerdings ein senkrechter Einfall der Ionen auf die Probe angenommen wurde. Aufgrund der Zylindergeometrie des Stents, ist der Einfallswinkel der Ionen größtenteils größer als 0° und somit auch die Implantationstiefe geringer.

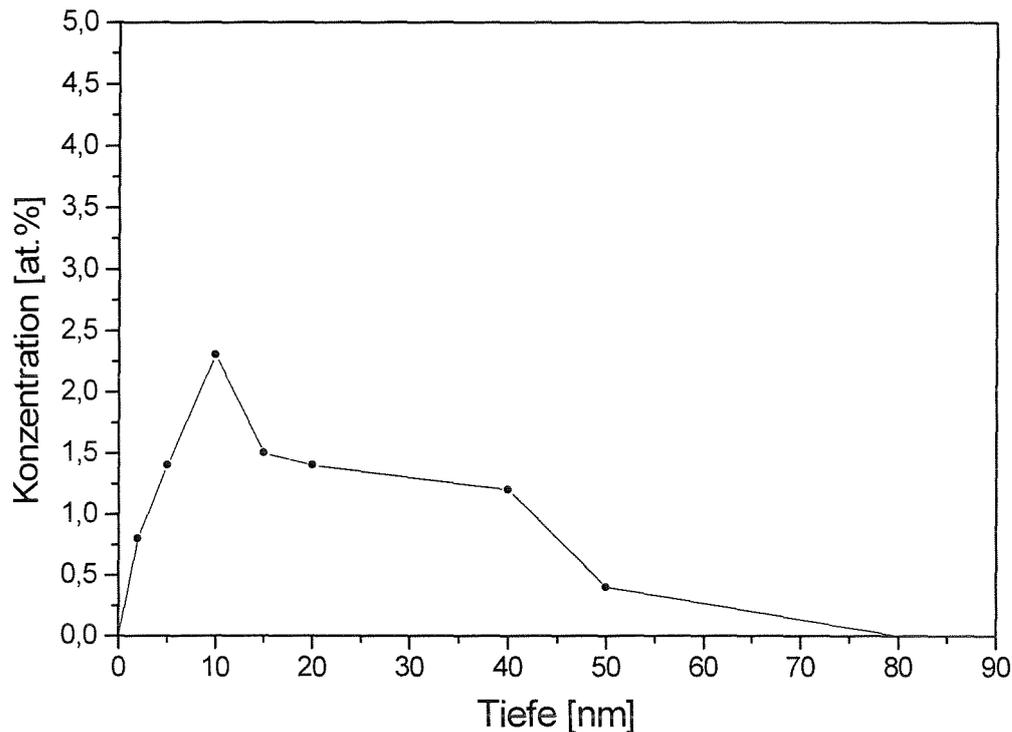


Abbildung 25: Tiefenprofil der Atomkonzentration von  $^{133}\text{Cs}$  des Stents Nr.041099-9 (Auger-Spektroskopie, ISOSTENT)

Dazu müssen zwei Dinge gesagt werden:

1. Die Cäsium-Konzentration wurde nur in den Tiefen 0, 0,2, 0,5, 1, 1,5, 2, 4, 5 und 8 nm gemessen, so daß keine genauere Angabe zur Tiefe maximaler Cäsium-Konzentration gemacht werden kann.
2. Im Stent wurde neben Cäsium auch noch eine große Menge an Kohlenstoff gefunden. Sein Tiefenprofil geht im Vergleich zu dem von Cäsium weiter ins Material hinein. Auch ist die maximale Kohlenstoff-Konzentration mit 80,4% an der Stentoberfläche enorm (s.Abb.26). Falls sich in der Oberflächenschicht eine Karbidschicht gebildet hat, dann kann die Sputtergeschwindigkeit nicht mehr – unter Annahme einer Materialdichte von Stahl – in eine Implantationstiefe umgerechnet werden. Es muß dann für jede Schicht die zugehörige Dichte bekannt sein, um aus der Sputtergeschwindigkeit die Tiefe zu errechnen. Da das in diesem Fall nicht gemacht wurde und eine Karbid-Schicht erfahrungsgemäß viel langsamer gesputtert wird als Stahl [36], ist anzunehmen, daß die angegebenen Tiefen in Wirklichkeit viel geringer sind. Es ist jedoch schwer eine absolute Tiefe anzugeben, wenn entweder die Dichte der zu untersuchenden Schicht nicht bekannt oder die Schicht sehr inhomogen ist.

Für die Implantationstiefe von Cäsium bedeutet das natürlich, daß auch diese in Wirklichkeit kleiner ist. Es könnte sein, daß die maximale Cäsium-Konzentration dicht an der Oberfläche sitzt. Dies ist wiederum für den späteren Einsatz eines

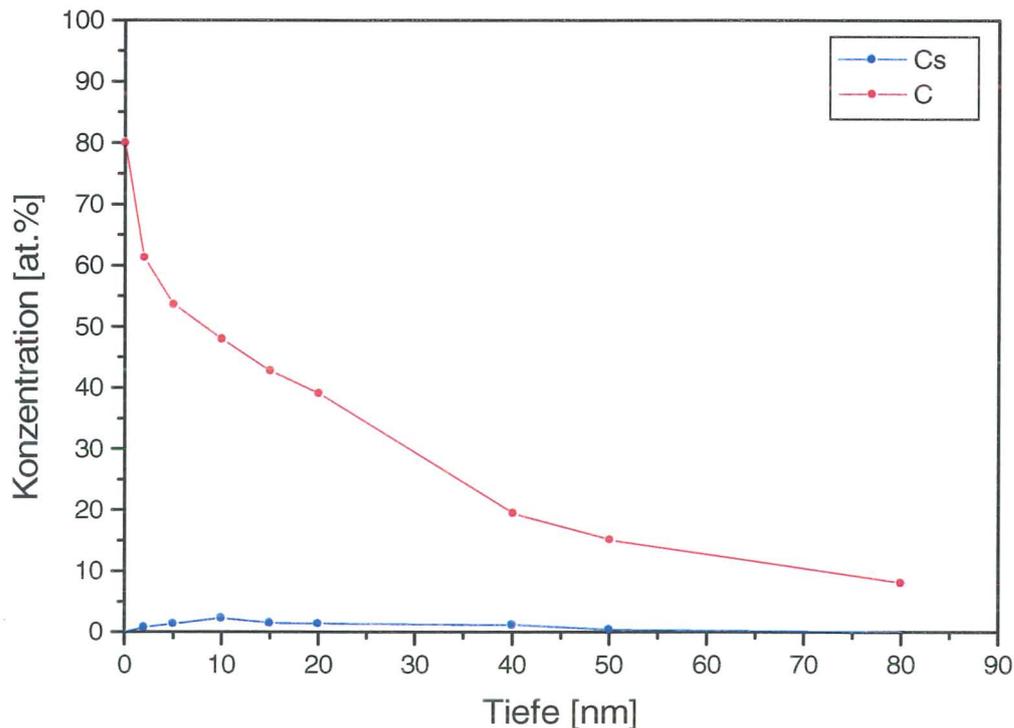


Abbildung 26: Tiefenprofil der Atomkonzentration von  $^{12}\text{C}$  und  $^{133}\text{Cs}$  des Stents Nr.041099-9 (Auger-Spektroskopie, ISOSTENT)

radioaktiven Stents in den Blutgefäßen sehr problematisch, weil implantierte Atome, die dicht unter der Oberfläche sitzen, leicht ausgewaschen werden können. Dies darf jedoch nicht passieren, da sich die Aktivität dann unkontrolliert im Körper des Patienten verteilen würde.

Wie die Ergebnisse der Auger-Spektroskopie von ISOSTENT zeigen, ist während der Implantation neben Cäsium auch Kohlenstoff in den Stent eingebracht worden. Wie und weshalb das der Fall ist, ist zu diesem Zeitpunkt noch nicht klar, da nicht bekannt ist, in welcher Form der Kohlenstoff vorliegt. Der erhöhte Kohlenstoff-Anteil im Stent-Material hat jedoch zur Folge, daß der Stahl an der Oberfläche brüchiger wird. Damit die mechanischen Eigenschaften des Stents auch an der Oberfläche nicht nachteilig verändert werden, muß das Einbringen von Kohlenstoff verhindert werden.

Aufgrund der Ergebnisse, wurde vermutet, daß der Massenseparator mit Vorpumpenöl verschmutzt ist. Der Grund dafür könnten vorangegangene Vakuumeinbrüche sein. Das würde bedeuten, daß ein Stent schon allein durch das Einbringen in die Implantationskammer mit Öl, das im Verbindungsschlauch zur Pumpe hängen könnte, verschmutzt wird. Um das zu überprüfen, wurde eine Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme (REM) eines Stents gemacht, der in den Massentrenner eingebracht aber nicht implantiert wurde. Das Ergebnis ist in Abb.27 zu sehen.

Der Stent ist mit schwarzen Flecken überzogen, die mittels EDX-Analyse als Ölpartikel nachgewiesen werden konnten. Daraufhin wurden nicht nur die Schläuche zu den Vorpumpen ausgewechselt sondern auch der gesamte hintere Teil des Massenseparators

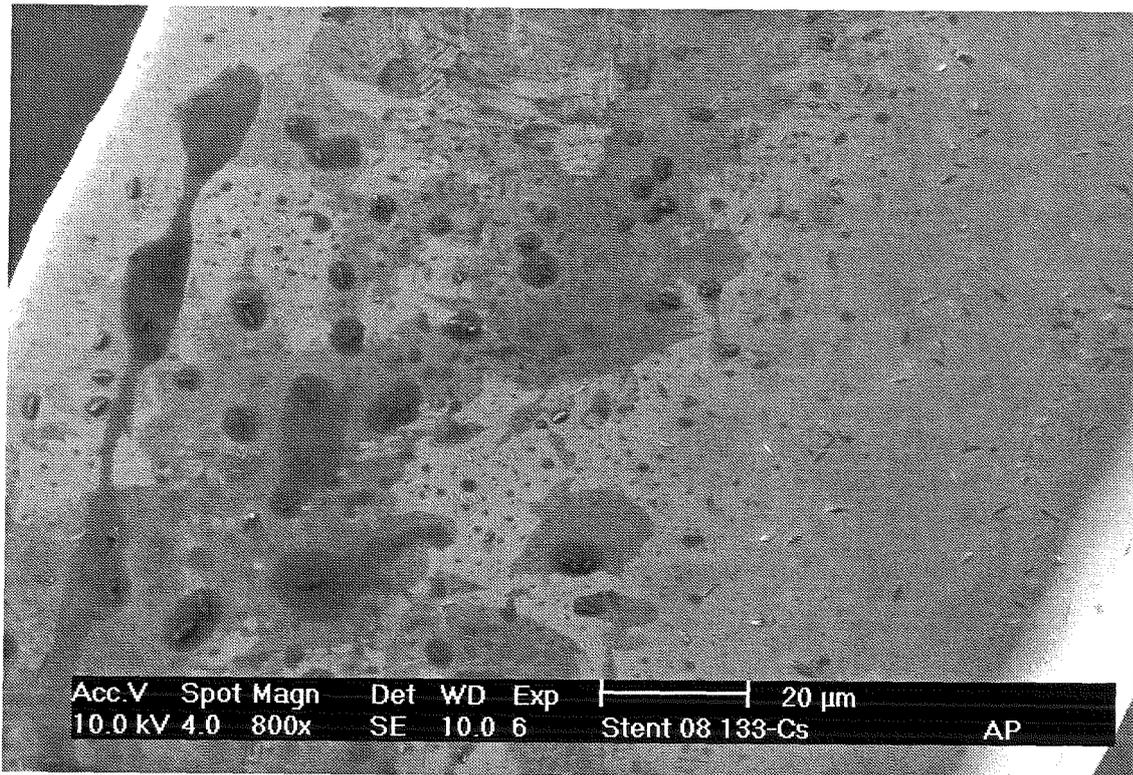


Abbildung 27: REM-Aufnahme eines Stents, der nur in den Massenseparator eingebracht wurde, ohne daß Cäsium implantiert wurde. Die schwarzen Flecken sind mit EDX nachgewiesene Öltropfen

gründlich mit Ethanol gereinigt.

## 2. Implantation

Da die Vermutung nahelag, daß der Kohlenstoff während des Implantationsprozesses aufgrund der massiven Ölverschmutzung des Massenseparators in den Stent gelangt war, wurde erneut ein Stent implantiert (Nr.090300-4), der dann zusammen mit einem nichtimplantierten aus der gleichen Charge (Nr.090300-1) untersucht werden sollte. In Tab.13 sind die Implantationsparameter wiedergegeben. Diesmal konnte mit der Auger-Spektroskopie nicht nur Kohlenstoff nachgewiesen werden, sondern aus der Form des Kohlenstoff-Peaks im Auger-Spektrum (s.Abb.29) konnte auch die Verbindung bestimmt werden, in der der Kohlenstoff vorliegt. Obwohl der Massenseparator gründlich gereinigt worden war, hatte sich im implantierten Stent eine Karbidschicht gebildet (s.Abb.28). Eine leichte, oberflächliche Kohlenstoffkontamination, die gut von der Karbidschicht zu unterscheiden ist, ist bei beiden Stents gefunden worden, also auch bei dem nichtimplantierten. Diese läßt sich bei Stahl wohl nicht vermeiden.

In Stent Nr. 090300-4 konnte Cäsium mit einer maximalen Konzentration von etwa 7 Atomprozent nahe der Stentoberfläche nachgewiesen werden. In Abb.28 kann man sehen, daß Cäsium in eine Tiefe von etwa 30nm reicht. Das Karbid hat bei 8nm eine maximale Konzentration von ca. 22 Atomprozent. Wie bei der ersten Auger-Spektroskopie sind auch hier wieder die Tiefenangabe in Absolutwerten mit Vorsicht

Bestrahlparameter	Stent-Nr.	
	090300-1	090300-4
Datum	–	24.03.00
Uhrzeit	–	15:48 - 16:20
Bestrahlungsdauer	–	32 min
Beschleunigungsspannung $U_{HV}$	–	55 kV
Einzellinsenspannung $U_{EL}$	–	17 kV
Rampenspannung $U_{wob-ss}$	–	700 V
Offsetspannung $U_{wob-offset}$	–	+4 V
Wobblersfrequenz $\nu_{wob}$	–	5 Hz
Blendenvorspannung $U_B$	–	–30 V
Beamstopstrom $I_{BS}$	–	7,2 $\mu A$
Alu-Cup-Strom $I_{Alu}$	–	1,4 $\mu A$
Stentnadelstrom $I_{Stent}$	–	1,8 $\mu A$
Fluenz $F_{stent}$ [Ionen/cm <sup>2</sup> ]	–	5,3·10 <sup>15</sup>
Dosis $D$ [Atome/cm <sup>2</sup> ]	–	1,8·10 <sup>15</sup>

Tabelle 13: Implantationsparameter der Stents Nr. 090300-1 und 090300-4

zu genießen, da nicht klar ist, ob die Schicht unter der Stentoberfläche nicht eine andere Dichte als die von Stahl hat.

Das Ergebnis der Untersuchung ist, daß sich trotz Reinigung des Massenseparators immer noch eine Karbidschicht während der Cäsiumimplantation bildet.

**3. Implantation** Die nächste Vermutung war, daß die angelegte Gegenspannung von  $U_B = -30$  V die Bildung der Karbidschicht begünstigen könnte. Deshalb wurden zwei weitere Stents implantiert – einer mit angelegter Vorspannung (Stent Nr.080500-1) und der andere ohne angelegte Blendenspannung (Stent Nr.080500-2). Die Implantationsparameter sind in Tab.14 aufgelistet.

Die implantierte <sup>133</sup>Cs-Dosis war bei beiden Stents mit  $D = 1,23 \cdot 10^{16}$  Atome/cm<sup>2</sup> für Stent Nr.080500-1 und  $D = 7,68 \cdot 10^{15}$  Atome /cm<sup>2</sup> im Vergleich zu den vorherigen Implantationen größer.

Die mittels Auger-Spektroskopie gemessenen Tiefenprofile beider Stents sind in Abb.30 zu sehen. Auf den ersten Blick fällt auf, daß die Karbidschicht bei Stent Nr.080500-2, der ohne angelegte Vorspannung implantiert wurde, viel stärker ausgebildet ist, als bei Stent Nr.080500-1, der bei einer Blendenspannung von  $U_B = -30$  V implantiert wurde. Nicht nur die maximale Konzentration an Kohlenstoff ist beim ohne Vorspannung implantierten Stent mit etwa 23 Atomprozent höher als bei dem anderen Stent (ca. 9 Atomprozent), auch die Schichtdicke ist mit 23nm etwas größer als beim mit Blendenspannung implantierten Stent (20nm).

Die anfängliche Vermutung, daß die Ausbildung einer Karbidschicht während der Cäsium-Implantation durch Anlegen einer Vorspannung von  $-30$  V an die Blende begünstigt wird, konnte hiermit widerlegt werden.

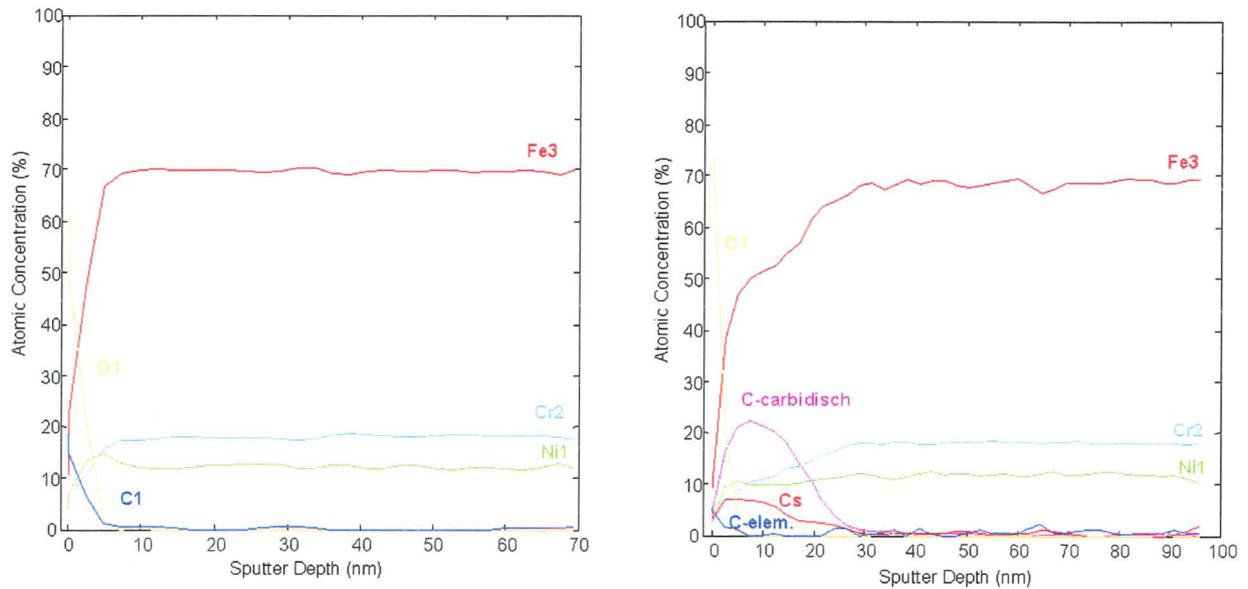


Abbildung 28: Mit Auger-Spektroskopie gemessene Tiefenprofile der Stents Nr.090300-1 (links) und Nr.090300-4 (rechts)

Bestrahlparameter	Stent-Nr.	
	080500-1	080500-2
Datum	25.05.00	25.05.00
Uhrzeit	12:00 - 14:30	15:02 - 18:00
Bestrahlungsdauer	150 min	178 min
Beschleunigungsspannung $U_{HV}$	55 kV	55 kV
Einzellinsenspannung $U_{EL}$	17 kV	17 kV
Rampenspannung $U_{wob-ss}$	680 V	680 V
Offsetspannung $U_{wob-offset}$	-39 V	-39 V
Wobblersfrequenz $\nu_{wob}$	50 Hz	50 Hz
Blendenvorspannung $U_B$	-30 V	-
Beamstopstrom $I_{BS}$	13,2 $\mu A$	10,0 $\mu A$
Alu-Cup-Strom $I_{Alu}$	2,3 $\mu A$	1,2 $\mu A$
Stentnadelstrom $I_{Stent}$	2,5 $\mu A$	1,4 $\mu A$
Fluenz $F_{stent}$ [Ionen/cm <sup>2</sup> ]	$4,11 \cdot 10^{16}$	$2,55 \cdot 10^{16}$
Dosis $D$ [Atome/cm <sup>2</sup> ]	$1,23 \cdot 10^{16}$	$7,3 \cdot 10^{15}$

Tabelle 14: Implantationsparameter der Stents Nr. 080500-1 und 080500-2

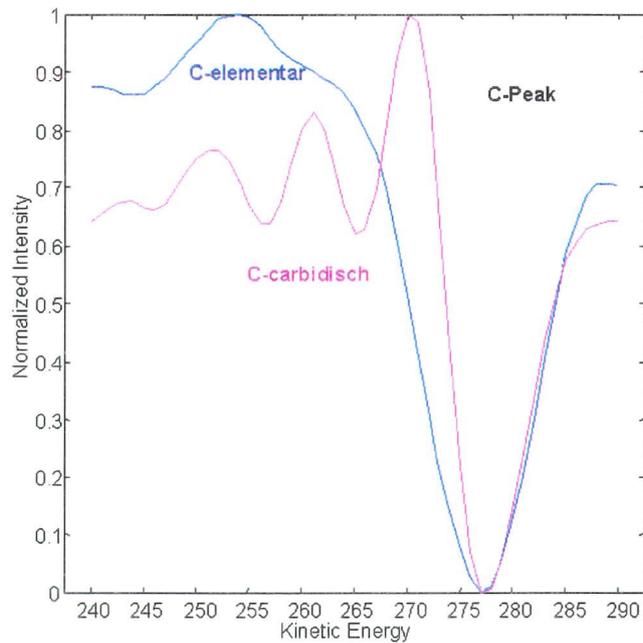


Abbildung 29: Peakform des elementaren sowie des karbidischen Kohlenstoffs im Auger-Spektrum

Außerdem fällt auf, daß bei beiden Stents die maximale  $^{133}\text{Cs}$ -Konzentration direkt an der Oberfläche liegt. Bei Stent Nr.050800-1 liegt sie mit 16 Atomprozent 3nm unterhalb der Stentoberfläche und bei Stent Nr.080500-2 mit 13 Atomprozent sogar direkt an der Oberfläche des Materials. Anstatt eines gaußförmigen Tiefenprofil, wird die Cäsium-Konzentration mit zunehmender Tiefe geringer.

#### 4. Implantation

Ein weiterer Versuch, die Bildung einer Karbidschicht während der Cäsium-Implantation zu verhindern, war die Implantation von  $^{133}\text{Cs}$  in Stent Nr.080500-3, nachdem in der Nähe der Implantationskammer eine mit flüssigem Stickstoff gefüllte Kühlfalle eingebaut worden war. Die Implantationsparametern sind in der folgenden Tab.?? aufgelistet.

Die implantierte Dosis war mit  $D = 1,5 \cdot 10^{15}$  Atome/cm<sup>2</sup> wieder relativ gering.

Die im Vakuum vorhandenen Kohlenwasserstoffe, die z.B. aus den Dämpfen der Vor- und Diffusionspumpenöle stammen, sollten sich nun anstatt auf dem Stent an der Kühlfalle niederschlagen [34, S.135-136]. Denn auch bei einem Vakuum von  $p = 10^{-6}$ mbar wächst die Oberflächenkontamination in einer Millisekunde um eine Monolage [35, S.14-16]. Von daher ist es unbedingt notwendig, in der Nähe des Stents eine Kühlfalle anzubringen.

In Abb.31 ist das Ergebnis der Auger-Spektroskopie zu sehen. Wie erhofft, hat sich diesmal während der Cäsium-Implantation keine Karbidschicht gebildet. Die geringe Cäsiumkonzentration hat an der Stentoberfläche ihr Maximum bei 5 Atomprozent und wird mit zunehmender Tiefe geringer. Ab 5nm Materialtiefe ist gar kein Cäsium mehr

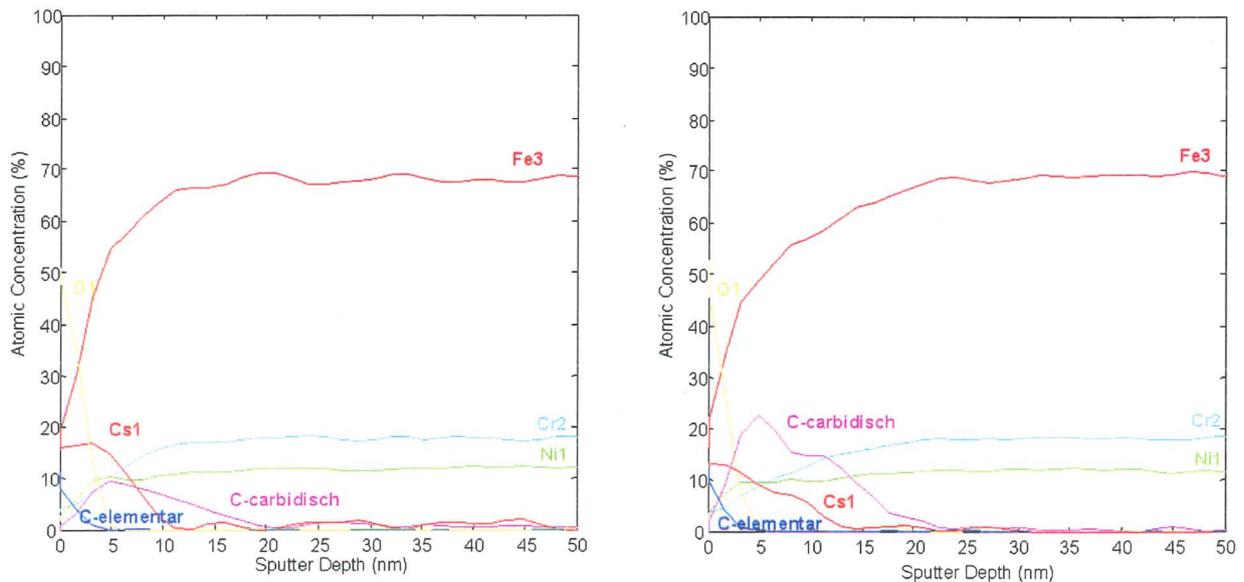


Abbildung 30: Mit Auger-Spektroskopie gemessene Tiefenprofile der Stents Nr.080500-1 (links) und Nr.080500-2 (rechts)

nachzuweisen. Die Tatsache, daß sich das Cäsium direkt an der Oberfläche befindet, ist für die spätere Produktion eines radioaktiven Stents sehr schlecht. Wie schon erwähnt, könnte dann eine große Menge an Cäsiumatomen ausgewaschen werden. Abschließend soll jedoch noch erklärt werden, wie es während der Cäsiumimplantation ohne Kühlfalle zur Bildung der Karbidschicht kommen konnte. Dieser Effekt wurde 1982 von I. L. Singer in [37] beschrieben. Während der Ionenimplantation werden Atome der Probenoberfläche weggesputtert, so daß diese reaktiver wird. Kohlenstoff-Verbindungen, die sich auf der Oberfläche niederschlagen, können durch die von den Cäsiumionen übertragene Stoßenergie gecrackt werden, so daß der Kohlenstoff mit Karbidbildner, wie z. B. Chrom, reagieren kann. Elementarer Kohlenstoff, der ja frei beweglich ist, kann aber auch ins Material eindiffundieren und dort erst Karbide bilden. Hinzu kommt, daß die Ausbildung der Karbidschicht von der Fluenz der zu implantierenden Ionen abhängt. Diese ist jedoch nicht trivial und muß für jeden Fall neu experimentell untersucht werden.

### 3.5 TRIM-Simulation zur Implantationstiefe von $^{133}\text{Cs}$ in Stahl

Mit dem Simulationsprogramm TRIM (= Transport of Ions in Matter), das auf Arbeiten von J. P. Biersack [38] und J. F. Ziegler [39] basiert, wurde eine mittlere Reichweite von 55keV  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen in einen Stahlstent der Dichte  $\rho_{\text{Stent}} = 7,956 \text{ g/cm}^2$  berechnet. Die Berechnung der Ionenverteilung wurde unter Verwendung der "Quick Calculation of Damage" gemacht. Das heißt, Berechnungen von Implantationsschäden basieren auf dem Kinchin-Pease-Formalismus ([40] - [42]).

Bestrahlparameter	Stent-Nr.
Datum	16.06.00
Uhrzeit	13:23 - 13:40
Bestrahltdauer	17 min
Beschleunigungsspannung $U_{HV}$	55 kV
Einzellinsenspannung $U_{EL}$	25,5 kV
Rampenspannung $U_{wob-ss}$	745 V
Offsetspannung $U_{wob-offset}$	-50 V
Wobblenfrequenz $\nu_{wob}$	50 Hz
Blendenvorspannung $U_B$	-30 V
Beamstopstrom $I_{BS}$	8,5 $\mu$ A
Alu-Cup-Strom $I_{Alu}$	1,7 $\mu$ A
Stentnadelstrom $I_{Stent}$	2,4 $\mu$ A
Fluenz $F_{stent}$ [Ionen/cm <sup>2</sup> ]	3,4 · 10 <sup>15</sup>
Dosis $D$ [Atome/cm <sup>2</sup> ]	1,5 · 10 <sup>15</sup>

Tabelle 15: Implantationsparameter des Stents Nr. 080500-3

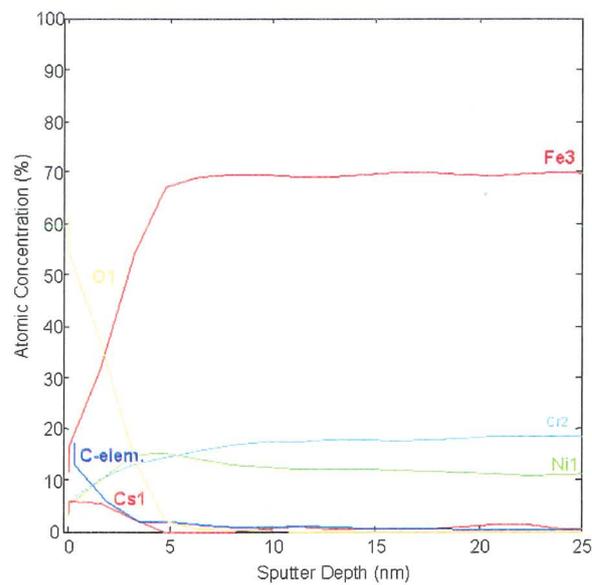


Abbildung 31: Mit Auger-Spektroskopie gemessenes Tiefenprofil des Stents Nr.080500-3

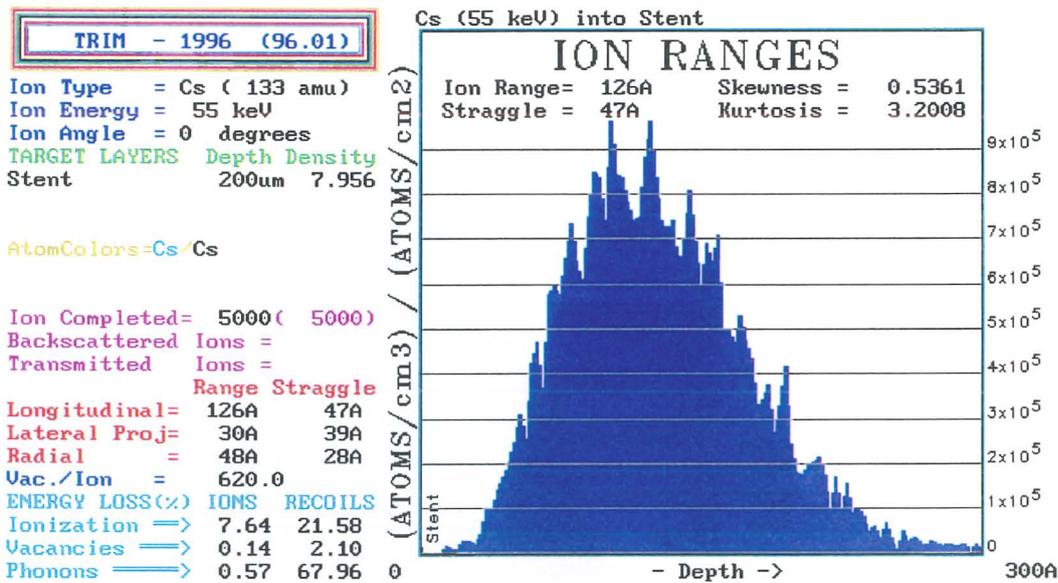


Abbildung 32: TRIM-Simulation der Reichweiteverteilung von 55keV  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen in Stahlstent ( $\rho_{\text{Stent}} = 7,956 \text{ g/cm}^3$ )

In Abb.32 ist die Tiefenverteilung von  $^{133}\text{Cs}$  im Stahlstent dargestellt; die mittlere Reichweite der Ionen beträgt 12,6 nm.

Es ist zu beachten, daß diese Implantationstiefe für Ionen simuliert wurde, die senkrecht auf die Fläche auftreffen (Winkel:  $0^\circ$ ). Da der Stent keine ebene Fläche ist sondern Zylindergeometrie hat, werden die Cäsiumionen nicht nur unter einem Winkel von  $0^\circ$  implantiert. Bei Implantation unter größeren Winkeln wird natürlich die auf die Flächennormale projizierte Reichweite der Ionen geringer und nur diese wird in den TRIM-Simulationen berechnet.

In Abb.33 und 34 sieht man, was passiert, wenn die Cäsium-Ionen in einen Stahlstent implantiert werden, in dessen Oberfläche (Dicke: 15 nm) schon 10 bzw. 20 Atomprozent  $^{133}\text{Cs}$  enthalten sind. Die Reichweite der Cäsiumionen im Stent wird mit zunehmender Zahl an schon implantierten Cäsiumatome überraschenderweise größer. Die mittlere Reichweite des Cäsiums beträgt bei einer 15 nm dicken Schicht mit 10 Atomprozent  $^{133}\text{Cs}$  14,3 nm und bei einer 15 nm dicken Schicht mit 20 Atomprozent  $^{133}\text{Cs}$  15,6 nm.

Die gleichen Simulationen sind auch für den Fall gemacht worden, daß die Stentoberfläche (Dicke: 20 nm) schon eine Konzentration von 10 bzw. 20 Atomprozent Kohlenstoff enthält. Auch in diesem Fall erhöht sich die mittlere Reichweite der Cäsiumionen mit zunehmender Konzentration an Kohlenstoff, wie in den Abb.35 und 36 zu sehen ist. Die mittlere Reichweite der Ionen wurde bei einer 20 nm dicken Schicht mit 10 Atomprozent Kohlenstoff zu 13,3 nm und bei einer 20 nm dicken Schicht mit 20 Atomprozent Kohlenstoff zu 14,1 nm berechnet.

Mit diesen Simulationen sollte überprüft werden, ob schon implantierte Cäsiumatome bzw. ein erhöhter Anteil an Kohlenstoff, die mittlere Implantationstiefe von 55keV

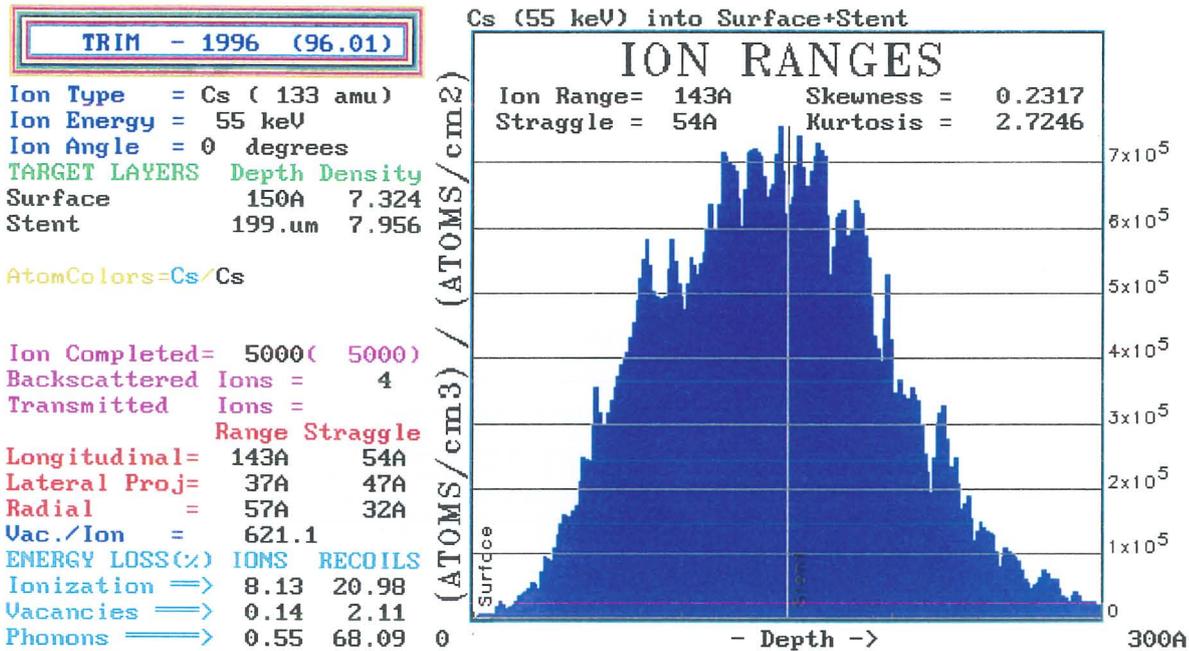


Abbildung 33: TRIM-Simulation der Reichweiteverteilung von 55keV  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen in Stahlstent ( $\rho_{\text{Stent}} = 7,956 \text{ g/cm}^3$ ), dessen 15nm dicke Oberflächenschicht 10 Atomprozent  $^{133}\text{Cs}$  enthält ( $\rho_{\text{Surface}} = 7,324 \text{ g/cm}^3$ ).

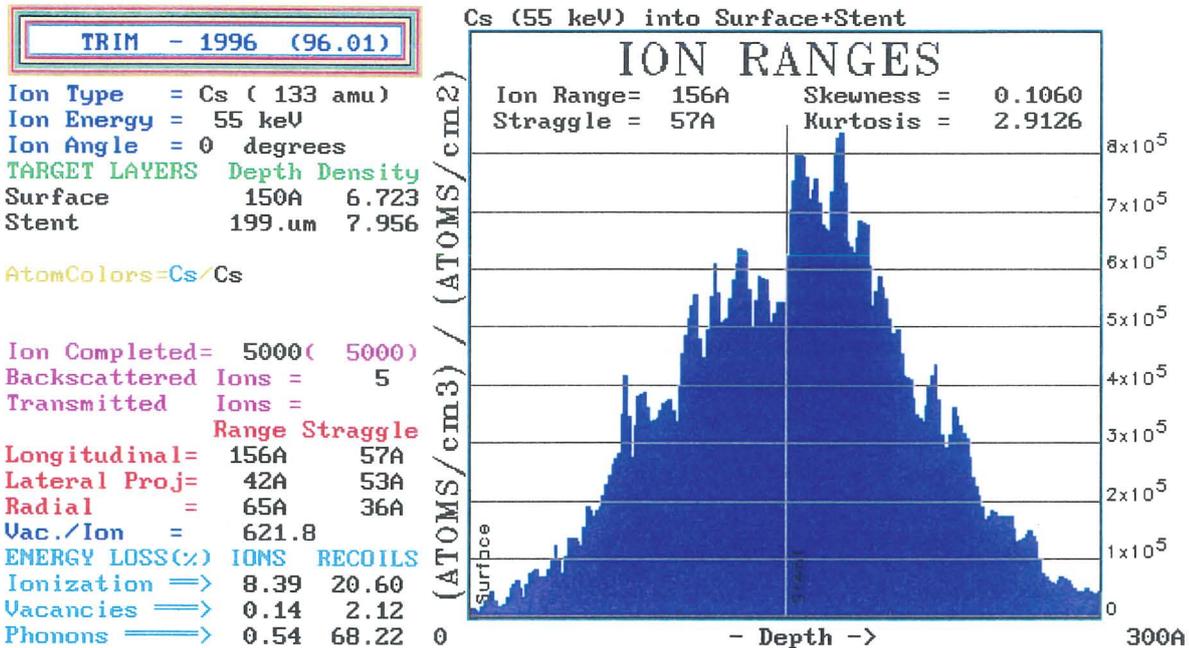


Abbildung 34: TRIM-Simulation der Reichweiteverteilung von 55keV  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen in Stahlstent ( $\rho_{\text{Stent}} = 7,956 \text{ g/cm}^3$ ), dessen 15nm dicke Oberflächenschicht 20 Atomprozent  $^{133}\text{Cs}$  enthält ( $\rho_{\text{Surface}} = 6,723 \text{ g/cm}^3$ ).

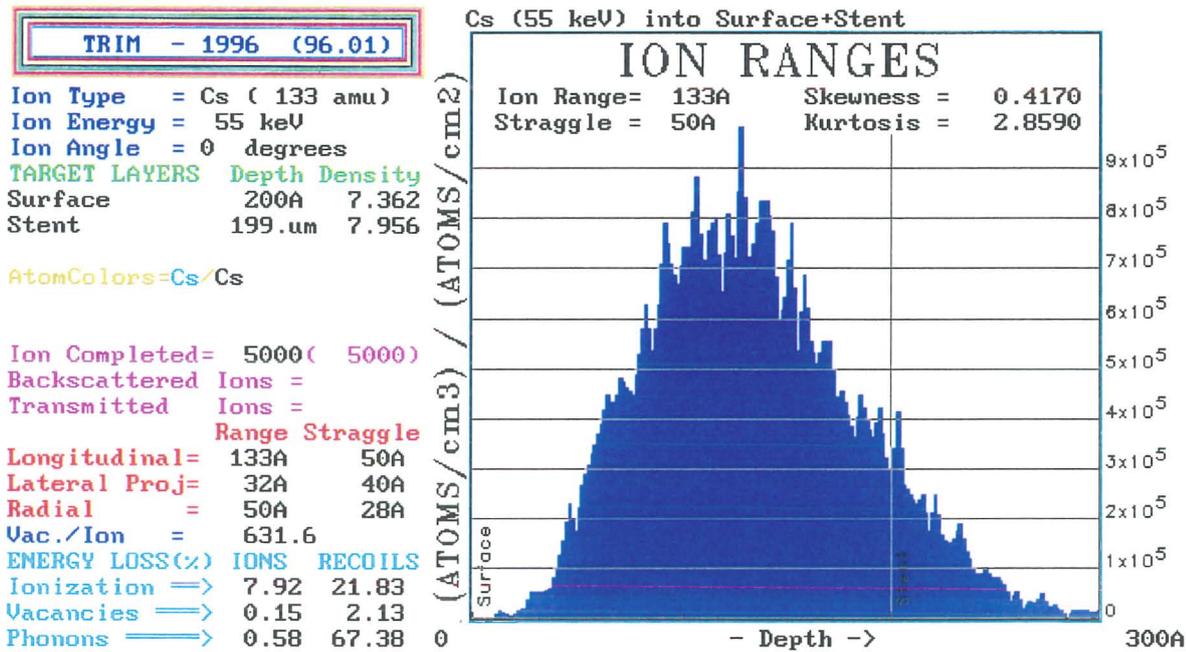


Abbildung 35: TRIM-Simulation der Reichweiteverteilung von 55keV <sup>133</sup>Cs-Ionen in Stahlstent ( $\rho_{\text{Stent}} = 7,956 \text{ g/cm}^3$ ), dessen 20nm dicke Oberflächenschicht 10 Atomprozent <sup>12</sup>C enthält ( $\rho_{\text{Surface}} = 7,362 \text{ g/cm}^3$ ).

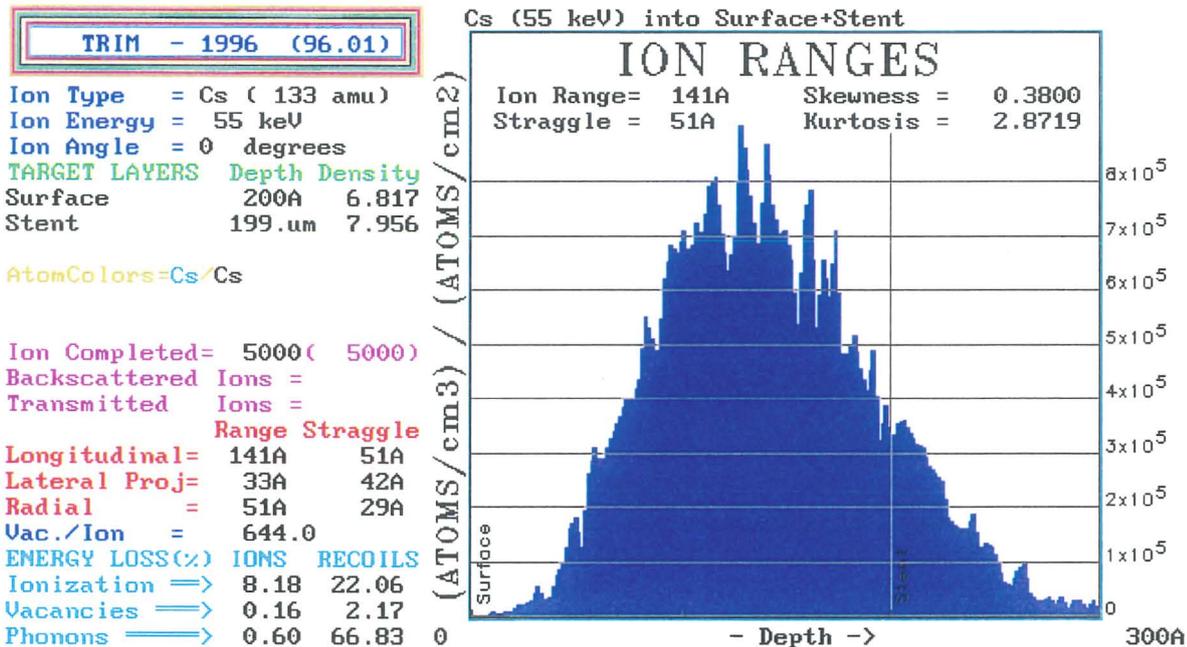


Abbildung 36: TRIM-Simulation der Reichweiteverteilung von 55keV <sup>133</sup>Cs-Ionen in Stahlstent ( $\rho_{\text{Stent}} = 7,956 \text{ g/cm}^3$ ), dessen 20nm dicke Oberflächenschicht 20 Atomprozent <sup>12</sup>C enthält ( $\rho_{\text{Surface}} = 6,817 \text{ g/cm}^3$ ).

<sup>133</sup>Cs-Ionen herabsetzt. Die Simulationen zeigen das Gegenteil, so daß hiermit nicht erklärt werden konnte, warum Cäsium in den Stent so oberflächennah implantiert wird. Allerdings müssen diese Ergebnisse unter Vorbehalt betrachtet werden, da bei der Simulation Implantationsschäden statistisch gesehen stark vereinfacht berechnet werden. Außerdem berücksichtigt das Simulationsprogramm in keinster Weise die dauernde Änderung der Elementzusammensetzung des Targets, da es sich um eine statische Version handelt.

## 4 Implantation von $^{131}\text{Cs}$ in einen Stent

Nachdem das Problem der Karbidschicht behoben war, konnte noch ein erster Stent mit  $^{131}\text{Cs}$  implantiert werden.

Da das im Zyklotron produzierte Radioisotop in etwa 250 ml Wasser gelöst vorlag, wurde zunächst die Flüssigkeitsmenge reduziert. Dazu wurde sie durch einen Ionentauscher geschickt, an dem die  $\text{Cs}^+$ -Ionen haften blieben. Anschließend wurde der Ionentauscher wieder entladen, indem er mit etwa 1,5 ml Salpetersäure gespült wurde. Nachdem auch diese Flüssigkeitsmenge mittels einer Heizplatte bei etwa  $120^\circ$  verdampft wurde, konnte das zurückgebliebene  $^{131}\text{Cs}$  in die Ionenquelle des Massentrenners eingebracht werden. Die Implantationsparameter der Produktion des ersten  $^{131}\text{Cs}$ -Stents waren folgende:

Bestrahlparameter	$^{131}\text{Cs}$ -Stent
Datum	12.07.00
Uhrzeit	15:45 - 16:30
Bestrahlungsdauer	45 min
Beschleunigungsspannung $U_{HV}$	55 kV
Einzellinsenspannung $U_{EL}$	25,5 kV
Rampenspannung $U_{wob-ss}$	640 V
Offsetspannung $U_{wob-offset}$	-50 V
Wobblerfrequenz $\nu_{wob}$	5 Hz
Blendenvorspannung $U_B$	-30 V
Beamstopstrom $I_{BS}$	8,8 $\mu\text{A}$
Alu-Cup-Strom $I_{Alu}$	$< 10^{-8}$ A
Stentnadelstrom $I_{stent}$	$< 10^{-8}$ A

Obwohl im Zyklotron etwa 500 MBq  $^{131}\text{Cs}$  produziert worden waren, war der  $^{131}\text{Cs}$ -Strom im Massenseparator kleiner als  $10^{-8}$  A und konnte deshalb weder am Faraday-Cup noch an der Stentnadel gemessen werden. Der so geringe  $^{131}\text{Cs}$ -Strom kommt daher, daß die Ionenquelle noch sehr stark mit dem nichtaktiven Isotop  $^{133}\text{Cs}$  beladen ist.

Die implantierte Ionendosis ließ sich nur aus der anschließenden Aktivitätsmessung bestimmen. Dazu wurde der Stent in 1 ml Königswasser, verdünnt mit ca. 50 ml Wasser, aufgelöst. Seine Gesamtaktivität wurde in einem Flüssigszintillationszähler (LSC) zu 975 kBq (= 26,4  $\mu\text{Ci}$ ) bestimmt. Das entspricht einer Dosis von  $4,2 \cdot 10^{12}$  Atome/cm<sup>2</sup>. Bevor der Stent aufgelöst wurde, ist jedoch noch der Abwasch bestimmt worden, das heißt die Menge an  $^{131}\text{Cs}$ , die durch die in Abs.3.3.1 beschriebene Waschprozedur aus dem Stent ausgewaschen wird. Dieses Kriterium ist für den späteren Einsatz im Menschen von besonderer Bedeutung, da es für den Stent ein erster Test unter Bedingungen ist, denen er auch im Blut ausgesetzt sein wird. Überschreitet der Abwasch eine bestimmte Grenze, dann kann der Stent für den medizinischen Einsatz nicht zugelassen werden. Zur Zeit kann nur etwas über den Abwasch des ersten Stents ausgesagt werden. Entgegen der Befürchtung, der Abwasch könnte sehr hoch sein, weil das Cäsium nicht sehr tief implantiert ist (s. Ergebnisse aus Abs.3.4.2), ist für den ersten Stent ein Abwasch von 1,07% bestimmt worden.

Da die Aktivität, und damit auch die Ionendosis, des Stents eigentlich etwa das 1000fache betragen soll [43], ist unklar, ob nicht mit zunehmender Ionendosis auch der Abwasch größer werden könnte. Bei radioaktiven Stents, die mit  $^{32}\text{P}$  implantiert wurden, ist nur eine schwache Abhängigkeit des Abwaschverhaltens von der Ionendosis festgestellt worden [44]. Für einen mit  $^{131}\text{Cs}$  implantierten Stent muß das aber erst noch untersucht werden.

## 5 Berechnung der Dosisverteilung eines $^{131}\text{Cs}$ -Stents

Zum Schluß wurde die Dosis eines BX18-Stents der Firma ISOSTENT berechnet. Dazu konnte ein Programm verwendet werden, das von E. Aker [46] speziell zur Dosisberechnung von Stents geschrieben wurde.

Dem Programm müssen die Daten zur Geometrie des längs aufgeschnittenen, und flach ausgebreiteten Stents übergeben werden. Diese Geometrie-Datei mußte für den BX18-Stent erst geschrieben werden.

Dazu wurde die Stentgeometrie aus drei Elementarzellen A, B und C aufgebaut, wobei die Zellen A und B aus 13 Linien und die Zelle C aus 11 Linien besteht (s.Abb.38). Aus diesen drei Zellen wurde nun der gesamte Stent aufgebaut, wobei sich folgende Anordnung ergab:

Stent- Länge  18,364 mm ↑ 0 mm	C		C		C		C		C	
	B	A	B	A	B	A	B	A	B	A
	A	B	A	B	A	B	A	B	A	B
	B	A	B	A	B	A	B	A	B	A
	A	B	A	B	A	B	A	B	A	B
	B	A	B	A	B	A	B	A	B	A
	A	B	A	B	A	B	A	B	A	B
	B	A	B	A	B	A	B	A	B	A
	A	B	A	B	A	B	A	B	A	B
	B	A	B	A	B	A	B	A	B	A
Polarwinkel $0^\circ \rightarrow 360^\circ$										

Am unteren Stent-Ende beginnt die Geometrie mit Zelle B und der unmittelbar folgenden Zelle A. Fünf von diesen Zellenpaaren "BA" nebeneinander angeordnet ergeben die erste Reihe, die einem kompletten Umlauf um den Stent entspricht ( $0^\circ$  bis  $360^\circ$ ). Die nächste Reihe ist ähnlich aufgebaut, nur daß die Reihenfolge der Zellen A und B vertauscht ist. Die oberste Reihe unterscheidet sich von den anderen, denn sie besteht aus 5 aneinandergereihten Elementarzellen vom Typ C.

Allerdings muß darauf hingewiesen werden, daß diese Stent-Geometrie auf einer ISO-STENT-Zeichnung des nicht-expandierten Stents basiert. Dazu wurde – unter Vernachlässigung von Verzerrungen, die durch die Stentexpansion auftreten – einfach nur der Stentdurchmesser von 1,5mm (nicht-expandierter Zustand) auf 3mm (expandierter Zustand) gesetzt. Zur Berechnung der Dosis, vor allem in kleinen Abständen, sollte besser die Geometrie des expandierten Stents benutzt werden.

Für einen  $^{131}\text{Cs}$ -Stent mit einer Aktivität von 185 MBq (=5mCi) ergab sich die in Abb.37 dargestellte Verteilung der Halbwertsdosis  $D_{1/2}$ . Das ist die Dosis, die nach der Halbwertszeit  $T_{1/2}^{Cs-131} = 9,69$  Tage appliziert wird. Für einen mit  $^{131}\text{Cs}$  dotierten BX18-Stent ist in der Stentmitte und radial in 1mm Abstand die Halbwertsdosis etwa 18 Gy. Am Stent-Ende fällt die Dosis radial in 1mm Abstand auf 13 Gy ab, also auf 72% der maximalen Dosis. Bei einem mit 880 kBq  $^{32}\text{P}$  dotierten BX-Stent beträgt die Dosis am Stent-Ende im Vergleich zur Stent-Mitte nur noch 43% [45]. 2mm vom Stent-Ende entfernt in 1mm radialem Abstand ist die Halbwertsdosis beim  $^{131}\text{Cs}$ -Stent auf

6,2 Gy, also auf 34% der Maximaldosis, abgefallen, während die Dosis des  $^{32}\text{P}$ -Stents dort schon auf 6,5% abgefallen ist.

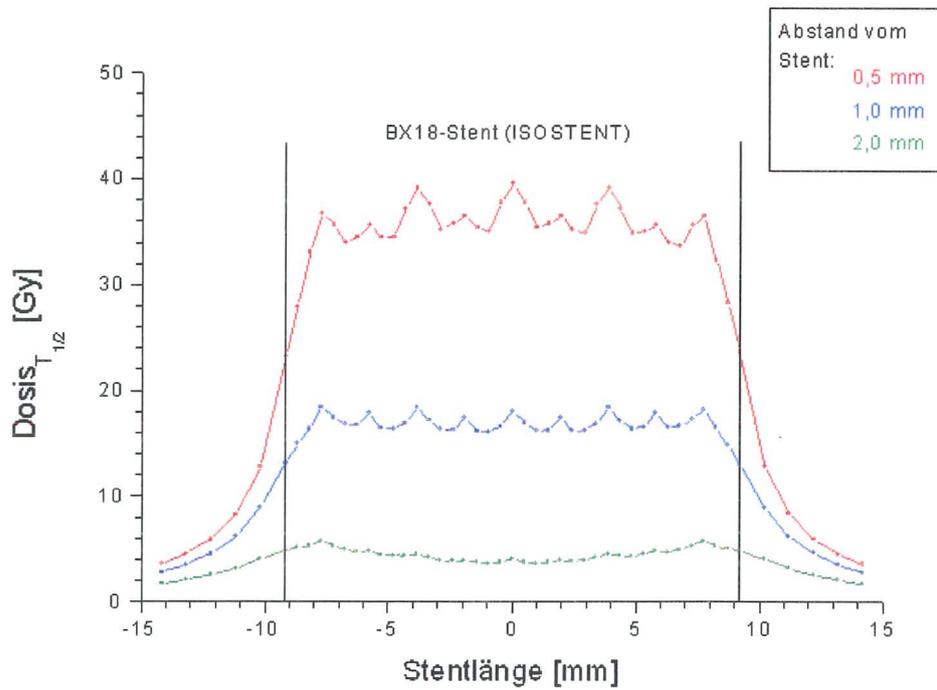


Abbildung 37: Dosisverteilung eines mit 185 MBq Gesamtaktivität  $^{131}\text{Cs}$  dotierten BX18-Stents der Firma ISOSTENT in den Abständen 0,5, 1 und 2 mm (Die Aktivität wurde über eine Halbwertszeit von  $^{131}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 9,69$  Tage) integriert.)

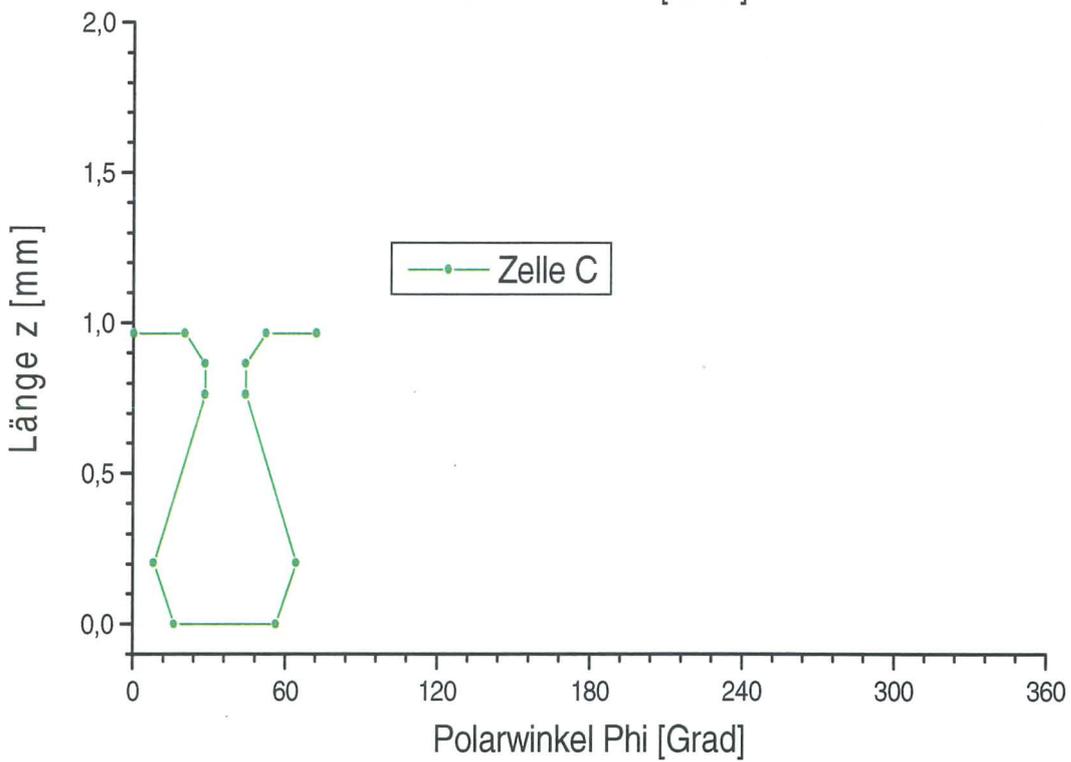
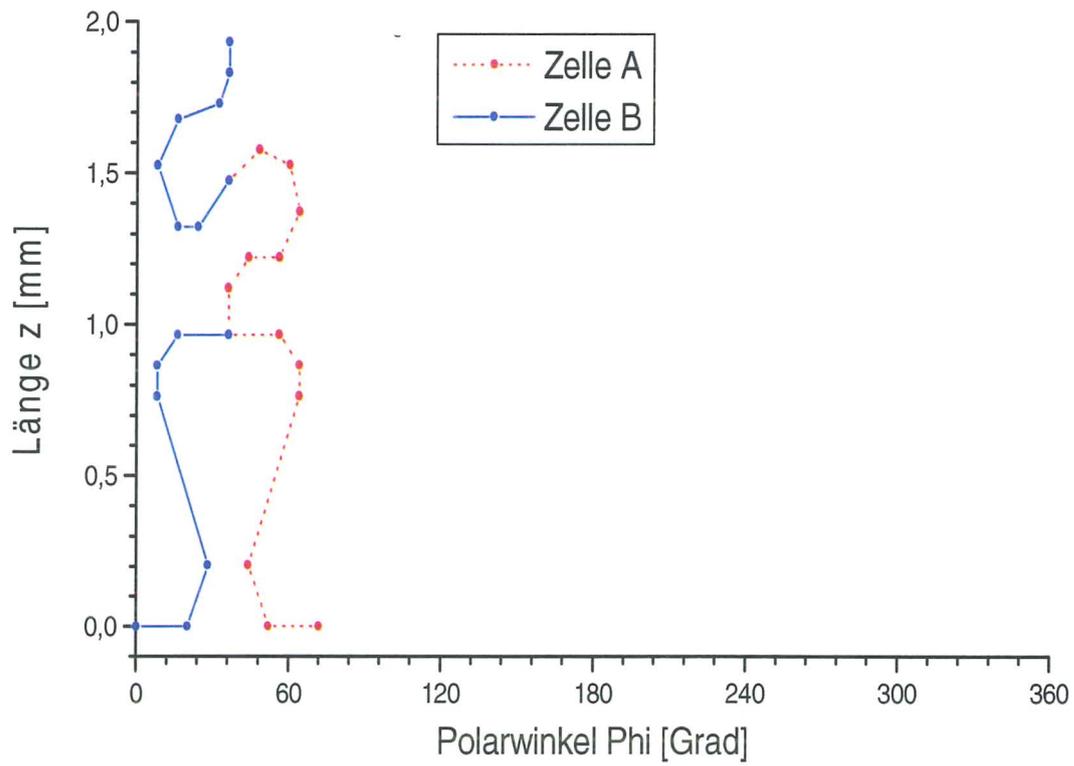


Abbildung 38: Elementarzellen A, B und C, aus denen die Stentgeometrie aufgebaut wurde, mit der die Dosis des BX18-Stents von ISOSTENT berechnet wurde.

## 6 Zusammenfassung und Ausblick

### 6.1 Zusammenfassung

Das Radioisotop  $^{131}\text{Cs}$  wurde über die protoneninduzierte Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  am Kompaktzyklotron (KAZ) des Forschungszentrums Karlsruhe produziert. Eine maximale Ausbeute von  $18\text{ MBq}/\mu\text{Ah}$  konnte für eine Protonenenergie von  $26\text{ MeV}$  gemessen werden. Der Vergleich mit der berechneten Ausbeute von  $66\text{ MBq}/\mu\text{Ah}$  bei  $26\text{ MeV}$ , in die eine für die Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  nach [19] abgeschätzte Anregungsfunktion einging, da keine experimentellen Daten vorlagen, zeigt eine Abweichung von Rechnung zu Experiment um einen Faktor 4. Ein Grund für die Abweichung könnte eine Überschätzung der Anregungsfunktion in der Ausbeuteberechnung gewesen sein. Hinzu kommt, daß nicht sicher ist, ob auch wirklich die gesamte produzierte Menge an  $^{131}\text{Cs}$  aus dem Target extrahiert werden konnte. Außerdem könnte das Gas im Target während der Bestrahlung aus dem Strahl gedrückt worden sein [30], so daß eine geringere Menge an  $^{131}\text{Cs}$  produziert wurde. Die letzten beiden Effekte werden wohl nur einen kleinen Beitrag zur Diskrepanz zwischen Experiment und Rechnung geliefert haben, wohingegen die zu hoch abgeschätzte Anregungsfunktion von  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  wohl maßgeblich zur Abweichung beigetragen hat.

Nach der Implantation des nichtaktiven Cäsiumisotops  $^{133}\text{Cs}$  in den Stahlstent wurde an der Oberfläche der Gefäßstütze eine Karbidschicht beobachtet. Dies konnte mit Auger-Spektroskopie nachgewiesen werden. Es wurde überprüft, ob eine angelegte Gegenspannung die Ausbildung der Karbidschicht beeinflusst. Dies konnte nicht bestätigt werden. Nachdem auch eine anfängliche massive Ölverschmutzung des Massenseparators nicht der ausschlaggebende Grund für die Karbidschicht war, konnte festgestellt werden, daß nach Einbau einer Stickstoff-Kühlfalle keine Karbidschicht mehr gebildet wurde. Die Bildung der Karbidschicht konnte auf im Vakuum vorhandene Kohlenwasserstoffe zurückgeführt werden, die sich während der Ionenimplantation auf dem Stent niedergeschlagen haben und mit Chrom eine karbidische Verbindung eingegangen sind (s. a. [37]).

Es konnte eine erster Stent mit dem aktiven Cäsiumisotop  $^{131}\text{Cs}$  dotiert werden. Da die Ionenquelle des Massenseparators allerdings mit einer großen Menge an  $^{133}\text{Cs}$  beladen war, war die Ausbeute für  $^{131}\text{Cs}$  sehr gering. Der Stent konnte deshalb nur mit einer Aktivität von  $975\text{ kBq}$  dotiert werden. An ihm wurden erste Abwaschtests gemacht, die ergaben, daß nur  $1,7\%$  der Aktivität ausgewaschen wurde. Es ist allerdings noch zu prüfen, ob der Abwasch auch für höhere Aktivitäten so gering ist. Die anfängliche Befürchtung, der Abwasch könnte wegen der geringen Implantationstiefe des Cäsiums von  $5 - 10\text{ nm}$  größer sein, hat sich für eine Aktivität von ca.  $1\text{ MBq}$  nicht bestätigt. Eine Simulation der Dosisverteilung des Stents ergab im radialen Abstand von  $1\text{ mm}$  eine Halbwertsdosis von  $18\text{ Gy}$  in der Stent-Mitte und  $13\text{ Gy}$  am Stent-Ende.  $2\text{ mm}$  vom Stent-Ende entfernt im radialen Abstand von  $1\text{ mm}$  betrug die Halbwertsdosis noch  $6\text{ Gy}$ , so daß hier noch ca.  $33\%$  der Maximaldosis appliziert werden. Diese Tatsache läßt hoffen, daß die Restenose an den Stent-Enden mit einem mit  $^{131}\text{Cs}$  dotierten Röntgenstent verringert werden könnte.

## 6.2 Ausblick

Für viele Probleme, die sich im Laufe der Diplomarbeit ergeben haben, gibt es Lösungsansätze, die im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr umgesetzt werden konnten. Sie sollen deshalb als Vorschläge für weiterführende Arbeiten verstanden werden.

Zunächst kann die theoretische Abschätzung der Ausbeute an  $^{131}\text{Cs}$  erheblich verbessert werden, wenn die Anregungsfunktion der Kernreaktion  $^{132}\text{Xe}(p,2n)^{131}\text{Cs}$  experimentell bestimmt ist. Die Durchführung dieser Messung ist am Kompaktzyklotron des Forschungszentrums Karlsruhe (KAZ) von einer Gruppe des Forschungszentrums Jülich geplant [47]. Mit der gemessenen Anregungsfunktion kann dann die Ausbeute neu berechnet und mit der in dieser Arbeit experimentell ermittelten verglichen werden.

Die bisher etwas geringe Ausbeute an  $^{131}\text{Cs}$  kann noch gesteigert werden, indem der Gasdruck im Xenon-Target durch zusätzliches  $^{132}\text{Xe}$ -Gas von 4 bar auf z.B. 10 bar erhöht wird. Außerdem könnte das bisherige Target durch ein Hochstromtarget ersetzt werden, daß Protonenströme bis zu  $200\mu\text{A}$  anstelle von bisher maximal  $50\mu\text{A}$  aushält. Durch diese beiden Maßnahmen könnte die Ausbeute an  $^{131}\text{Cs}$  theoretisch verzehnfacht werden.

Bevor jedoch der  $^{131}\text{Cs}$ -Stent für den Einsatz in der Medizin produziert wird, sollte der Implantationsprozeß von Cäsium in Stahl besser verstanden sein. Dazu bedarf es Materialuntersuchungen, die zunächst an Stahlplättchen durchgeführt werden sollten, um Effekte aufgrund der komplizierten Stent-Geometrie außen vor zu lassen. Auch sollten die Bedingungen, unter denen sich eine Karbidschicht während der Cäsium-Implantation bildet, besser abgeklärt werden, z.B. ob Ionendosis oder Fluenz darauf einen Einfluß haben. Dieses Problem könnte aber eventuell auch beseitigt werden, indem die bisherigen Ölpumpen durch Turbomolekularpumpen ersetzt würden. Außerdem sollte genauer untersucht werden, inwieweit schon implantierte Cäsiumatome wieder rausgesputtert werden. Sollte sich herausstellen, daß dadurch viele Cäsiumatome "verloren gehen", könnte man in einer Sauerstoffatmosphäre mit einem Partialdruck von beispielsweise  $10^{-5}$  mbar implantieren. Dies würde ebenfalls für eine Umstellung des Pumpensystems auf Turbomolekularpumpen sprechen.

Um die Ausbeute der Ionenquelle für das radioaktive  $^{131}\text{Cs}$  deutlich zu verbessern, müßte die Ionenquelle gereinigt werden oder eventuell durch eine neue ersetzt werden. Die simulierte Dosisverteilung des  $^{131}\text{Cs}$ -Stents zeigt, daß Restenosen an den Stent-Enden durch das Einsetzen des Röntgenstents verringert werden könnten. Es wäre also interessant, nach einem besseren Verständnis der Cäsium-Implantation in Stahl, erste Tests zum Restenoseverhalten nach Implantation von  $^{131}\text{Cs}$ -Stents zu machen.



# Danksagung

Diese Arbeit wurde in der Hauptabteilung Zyklotron des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt. Für die Ermöglichung der Arbeit danke ich Herrn Dr. Hermann Schweickert. Ferner danke ich allen Mitarbeitern der Hauptabteilung. Bei der Durchführung der Arbeit wurde ich insbesondere unterstützt und beraten von

Prof. Dr. Heinigerd Rebel (Institut für Kernphysik, Forschungszentrum Karlsruhe),

Dr. Klaus Schlösser, Susanne Eggmann, Johannes Wilhelm Peters, Jürgen Bialy, Markus Schmitt, Hartmut Heinzmann, Olga Dombrowski, Michael Leinberger, Werner Möck, Bernd Schüssler, Britta Haut, Steffi Maurer, Jürgen Möllenbeck, Dieter Erbe, Johann Kaltenbaek, Walter Maier und Dr. Volker Bechtold (Hauptabteilung Zyklotron, Forschungszentrum Karlsruhe) sowie von

Dr. Hans-Michael Bruns und Dr. Hanns Klewe-Nebenius (Institut für Instrumentelle Analytik, Forschungszentrum Karlsruhe).

Außerdem möchte ich mich bei Andreas Przykutta für die Durchführung der Rasterelektronenmikroskop-Aufnahmen und bei Eberhard Nold für die Auger-Spektroskopie ganz herzlich bedanken (Institut für Materialforschung, Forschungszentrum Karlsruhe).

Für die Durchführung der Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie möchte ich mich bei Dr. Horst Baumann (Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main) sowie bei Dr. Rainer Fromknecht (Institut für Nukleare Festkörperphysik, Forschungszentrum Karlsruhe) bedanken. Dr. Horst Baumann danke ich außerdem für die hilfreichen Ratschläge bezüglich der Ionenimplantation.



## Literatur

- [1] The world health report 1999; World Health Organization; 1999
- [2] U. Gleichmann, H. Mannebach, S. Gleichmann, K. Held; Herausforderung Atherosklerose in den 90ern; Steinkopff Verlag Darmstadt; 1991
- [3] Online-Magazin MedizInfo; J. Wehner (Hrsg.) in:  
<http://www.medicus.de/kardio/>
- [4] Roche Lexikon Medizin; Urban & Schwarzenberg; 1984
- [5] G. Domik; Fachb. Informatik der Universität Paderborn in:  
<http://www.uni-paderborn.de/fachbereich/AG/agdomik/extern/visualisierung/vis-vl-ss98/anmerkungen/arteriosklerose/arteriosklerose.htm>; Vorlesung über Computergenerierte Visualisierung; Juli 2000
- [6] C. Leuner; Städtisches Klinikum Bielefeld Mitte in:  
[http://home.t-online.de/home/chr.leuner/khk\\_wass.htm](http://home.t-online.de/home/chr.leuner/khk_wass.htm); Private Internetseite; Juli 2000
- [7] J. Heuser; Vinenzkrankenhaus Hannover in:  
<http://www.vinenzkrankenhaus.de>; Internetseite; Juli 2000
- [8] Online-Magazin MedizInfo; J. Wehner (Hrsg.) in:  
<http://www.medicus.de/kardio/balldilatation.htm>; Juli 2000
- [9] R. Erbel; Abteilung für Kardiologie der Universität Essen in:  
<http://www.uni-essen.de/cardio/fall/link/stent2.htm>; Internetseite; Juli 2000
- [10] C. Hehrlein, M. Zimmermann, J. Metz, P. Fehsenfeld, E. von Hodenberg; Circulation 1993 Suppl.; 88/4:651; abstract
- [11] C. Hehrlein, C. Gollan, K. Dönges, J. Metz, R. Riessen, P. Fehsenfeld, E. von Hodenberg, W. Kübler; Circulation 1995; 92/6:1570-1575
- [12] C. Hehrlein, M. Stintz, R. Kinschef, K. Schlösser, E. Huttel, L. Friedrich, P. Fehsenfeld, W. Kübler; Circulation 1996; 93/4:641-645
- [13] US Patentnummer 5,059,166; 21.10.1991
- [14] C. Hehrlein, T. A. Fischell; "History of the radioisotope stent" in:  
Vascular Radiotherapy Monitor 2000; Online-Ausgabe; <http://www.remedia.com>
- [15] R. Waksman; "Clinical trials in radiation therapy for restenosis: past, present and future" in:  
Vascular Radiotherapy Monitor 2000; Online-Ausgabe; <http://www.remedia.com>
- [16] A. Hanser; KfK-Nachrichten 1987; 19/2:83-88
- [17] K. H. Lieser; Einführung in die Kernchemie; VCH Verlagsgesellschaft mhH; 1991

- [18] P. Marmier; Kernphysik I; Verlag des Vereins der Mathematiker und Physiker Zürich; 1968
- [19] K. A. Keller, J. Lange, H. Münzel in:  
Landolt-Börnstein; Neue Serie I/5c; Springer Verlag Heidelberg; 1974
- [20] F. Helus; Radionuclides production; Vol.I; CRC Press; 1983
- [21] N. I. Venikov, V. I. Novikov, A. A. Sebiakin; Applied Radiation and Isotopes 1993;44/4:751-754
- [22] H. Schweickert; KfK-Nachrichten 1984; 16/4:204-213
- [23] V. Bechtold, B. Kemmerer; NACHRICHTEN-Forschungszentrum Karlsruhe 2000; 32/1-2:10-14
- [24] Qualitätszertifikat Nr. I-210200/1; JSC "JV ISOFLEX", 123182 Schukinskaya st. 12-1, Moscow, Russia
- [25] W. Maier; private Mitteilung
- [26] J. W. Peters; TARGET-Programm; unveröffentlicht
- [27] H. Schüttelkopf; private Mitteilung
- [28] Experimental Nuclear Reaction Data File in:  
<http://www-nds.iaea.org/exfor>; Datenbank der *International Atomic Energy Agency*; Juli 2000
- [29] H. Kuchling; Taschenbuch der Physik; 14. Aufl.; Fachbuchverlag Leipzig; 1994
- [30] D. K. Mc Daniels, I. Bergqvist, D. Drake, J. T. Martin; Nuclear Instruments and Methods 1972; 99:77-80
- [31] A. Hanser; TT-Bericht Nr. 50U332.0 P 02A; Forschungszentrum Karlsruhe; 1987
- [32] C. W. Wegst; Stahlschlüssel – Nachschlagewerk für Stähle; Verlag Stahlschlüssel Wegst GmbH; 1998
- [33] P. L. F. Hemment; "Measurement of ion implantation" in:  
J. F. Ziegler; Ion Implantation - Science and Technology; Academic Press; 1988
- [34] H. Ryssel, I. Ruge; Ionenimplantation; B. G. Teubner Stuttgart, 1978
- [35] W. Pupp, H. K. Hartmann; Vakuumtechnik - Grundlagen und Anwendungen; Carl Hanser Verlag; 1991
- [36] W. Assmann; private Mitteilung
- [37] I. L. Singer; Vacuum Science Technology 1984; 34/10-11:853-859
- [38] J. P. Biersack, L. Haggmark; Nuclear Instruments and Methods 1980; 174:257

- [39] J. F. Ziegler; The stopping and range of ions in matter; Vol.2-6; Pergamon Press; 1977-1985
- [40] G. H. Kinchin, R. S. Pease; Reports on Progress in Physics 1955; 18:1-51
- [41] P. Sigmund; Radiation Effects 1969; 1:15-18
- [42] M. J. Norgett, M. T. Robinson, I. M. Torrens; Nuclear Engineering and Design 1975; 33:50-54
- [43] R. Glenn; private Mitteilung
- [44] M. A. Golombeck; Diplomarbeit; Universität Karlsruhe; 1997
- [45] K. Schlösser; unveröffentlicht
- [46] E. Aker; Dosis-Programm; unveröffentlicht
- [47] J. Bialy; private Mitteilung
- [48] Roche Lexikon Medizin; Online-Version 3.5; Urban & Fischer Verlag in:  
<http://www.roche-lexikon.de>; Juli 2000
- [49] Online-Magazin MedizInfo; J. Wehner (Hrsg.) in:  
<http://www.medicus.de/kardio/ar1.htm>; Juli 2000
- [50] H. Oechsner; Institut für Oberflächen- und Schichtanalytik GmbH der Universität Kaiserslautern in:  
<http://www.uni-kl.de/IFOS/index.htm>; Internetseite; Juli 2000
- [51] K.-H. Schartner; I. Physikalisches Institut Abt. Plasma- und Atomstoßphysik der Universität Gießen in:  
<http://werwulf.physik.uni-giessen.de/plasma-atom/f-praktikum/prinzip.html>; Internetseite; Juli 2000

# A Medizinisches Lexikon

Die folgenden Begriffserklärungen sind z. T. aus dem Roche Lexikon Medizin [48] entnommen.

## Arteriosklerose

”Arterienverkalkung”; häufigste Systemerkrankung der Arterien (s.a. Arteriolosklerose), u. zwar als chronisch fortschreitende Degeneration (Atheromatose) mit produktiven Veränderungen der Gefäßwand (Atherosklerose). Führt zu Wandverhärtungen u. -deformierung mit Elastizitätsverlust u. Verengung der Gefäßlichtung (durch arteriosklerotische Plaques, sekundäre Thrombosen). Als ursächlich (= ätiologisch) bedeutsam gelten neben konstitutionellen u. Alternsfaktoren (”Physiosklerose”) u.a. die Lebensweise (z.B. lipidreiche Ernährung), toxische Einflüsse (Nicotin), Hypertonie, Stoffwechselliden (z.B. Diabetes) u. chronische, z.B. rheumatische Entzündungen. Untersuchungen deuten auf einen Zusammenhang zwischen einer Infektion durch *Chlamydia pneumoniae* u. der Entstehung einer A. hin. Der Verdacht stützt sich auf den hohen Antikörpertiter gegen diesen Erreger bei der Mehrzahl der Herzinfarktpatienten u. auf den direkten Nachweis von Chlamydien in atheromatösen Plaques. Nach der Response-to-injury-Theorie steht am Beginn einer A. ein Endotheldefekt, der normalerweise abheilt, bei besonderer Stärke der verursachenden Noxen jedoch zu einem Entgleisen des Stoffwechsels der Intima u. damit zum dauerhaften Durchbruch der Endothelbarriere führt. Die Theorie wurde neuerdings modifiziert in dem Sinn, daß ein Defekt nicht zwingend vorhanden sein muß u. schon eine ”Aktivierung” des Endothels ausreicht, um den nachfolgenden Sklerosierungsprozeß in Gang zu setzen. – Als besondere Formen die ”zentrale A.” mit typischer (u. oft alleiniger) Lokalisation in der Aorta (Aortensklerose) u. deren großen Ästen (evtl. thorakal oder abdominal betont) sowie Verläufe, bei denen einzelne Organe oder Organsysteme im Vordergrund stehen (z.B. als Koronar-, Zerebralarterien-, Nephrosklerose) oder aber v.a. die Extremitäten betroffen sind (”Gänsegurgelarterien” bei der MÖNCKEBERG<sup>ast</sup> Sklerose); s.a. Arteriopathia calcificans infantum. – Die Gefäßeinengungen bis -verschlüsse (A. obliterans) der Arterien führen zu vielfältiger allgemeiner u. organspezifischer Symptomatik wie Abmagerung, geistige u. körperliche Leistungsschwäche bzw. Infarkte u. Malazien (v.a. an Gehirn u. Herzmuskel), Gangrän der Gliedmaßen, atrophische Schrumpfung (z.B. Schrumpfniere), Diapedeseblutung u./oder Gefäßeinrisse (Apoplexia cerebri [s.a. Hirnischämie]), Aneurysmen, Embolien. – Außer der A. i.e.S. (Atherosklerose) alle mit Sklerose einhergehenden Arterienerkrankungen wie Arteriolosklerose, MÖNCKEBERG\* Mediaverkalkung oder Sklerose.

aus: [48]

## Gefäßaufbau

Ein Blutgefäß besteht aus drei Hauptschichten: Intima (lat. *intimus* ”innerst”), Media (lat. *medius* ”mittlerer”) und Adventitia.

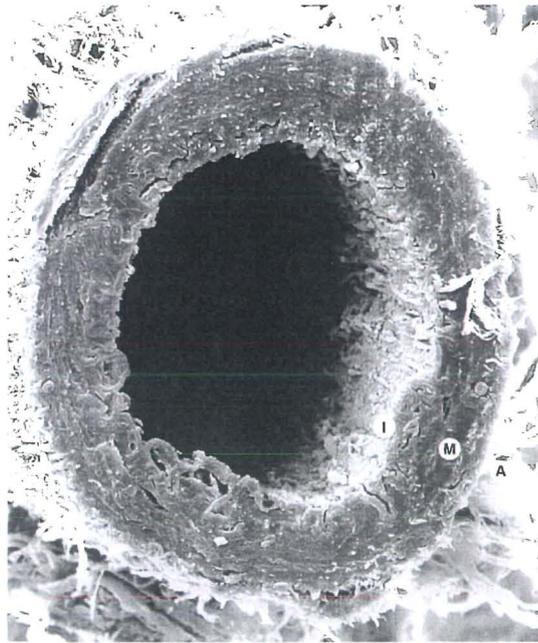
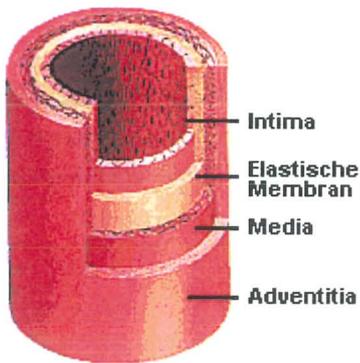


Abbildung 39: Gefäßaufbau: schematische Darstellung (links) [49], Photographie (rechts) [5]

- Intima (I) Die innerste Schicht besteht aus flachen Endothelzellen, die für einen reibungslosen Blutfluß sorgen.
- Media (M) Die mittlere Schicht besteht aus glatten Muskelfasern. Diese zähe und zugleich elastische Muskelschicht ermöglicht ein Anpassen des Arterien-durchmessers an Blutdruckschwankungen, indem sie das Gefäß zusammenzieht oder dehnt.
- Adventitia (A) Die äußere Schicht besteht aus Bindegewebe und umhüllt die inneren Schichten.

aus: [49]

## Proliferation

(engl.: proliferation). Vermehrung von Gewebe durch Wucherung oder Sprossung, meist im Rahmen von Entzündung, Wundheilung oder Regeneration.

aus: [48]

## Ödem

(Gewebswassersucht; engl.: edema). Umschriebene oder diffuse, meist schmerzlose Ansammlung aus dem Gefäßsystem ausgetretener seröser Flüssigkeit in den Gewebsspalten

von Haut (Anasarka) oder Schleimhaut, aber auch in Nervengewebe, im Interstitium parenchymatöser Organe; ferner interzellulär u. interfibrillär (z.B. bei Elephantiasis); s.a. Ödemkrankheit. – Als wichtigste Organformen das Lungenödem, Hirnödem.  
aus: [48]

## Stent

(engl.: stent). Schmalere Faden, Stäbchen oder Katheter zur Sicherung der Durchgängigkeit einer tubulären bzw. röhrenartigen Gewebestruktur, z.B. eines verengten Blutgefäßes; Anw. als Röhren-Stent z.B. bei Koronarstenose, s.a. Koronarendoprothese.  
aus: [48]

## B Programm zur Ausbeuteberechnung

Mathematica<sup>5</sup>-Programm zur Berechnung der Ausbeute von <sup>131</sup>Cs, das über die Kernreaktion <sup>132</sup>Xe(p,2n)<sup>131</sup>Cs produziert wird:

Parameter, die an das Programm yield[s,t,u,cu,bz] übergeben werden müssen:

s: Energie der Protonen, mit der sie aus dem Zyklotron kommen [MeV]  
t: Eintrittsenergie der Protonen ins Xe-Gas [MeV] (nach 2 Molybdänfolien !)  
u: Austrittsenergie der Protonen aus dem Xe-Gas [MeV]  
cu: Protonenstrom [ $\mu A$ ]  
bz: Bestrahldauer [s]

Programm-Definition (muß vor erstmaliger Berechnung einmal ausgeführt werden!):

```
yield[s_,t_,u_,cu_,bz_] :=  
Block[{} ,  
l=(1-N[Exp[-Log[2]*bz/837216]]);  
z=1;  
M=131.904;  
Z=54;  
r=11.5*Z;  
ep1=t;  
ep2=u;  
Y=cu*0.001*1*6.023*Power[10,23]*  
NIntegrate[(24.07662+11583.29968/(9.9806*Sqrt[Pi/2])*Exp[-2*  
Power[(x-19.77224),2]/Power[9.9806,2]])/  
(-4*Pi*Power[z,2]*Power[1.44,2]*Power[10,-26]*6.023*Power[10,23]*Z*  
(Log[(2*511*(1-(Power[938.3,2]/Power[x+938.3,2])))/(r)]-Log[Power[938.3,2]/  
Power[x+938.3,2]]-(1-(Power[938.3,2]/Power[x+938.3,2])))/  
(0.511*M*(1-(Power[938.3,2]/Power[x+938.3,2]))))  
,{x,ep2,ep1}]/  
(3.7*Power[10,4]*z*1.602*Power[10,-13]*M*Power[10,27]);  
Print["Die Ausbeute betraegt ", Y "mCi/",cu" $\mu A$ "];  
Print["Die Bestahldauer betrug ", bz"s"];  
Print["Der Protonenstrom betrug ",cu" $\mu A$ "]  
]
```

Beispiel:

```
yield[26,25.123,18.406,10,3600]  
Die Ausbeute betraegt 17.1834 mCi/10  $\mu A$   
Die Bestahldauer betrug 3600 s  
Der Protonenstrom betrug 10  $\mu A$ 
```

---

<sup>5</sup>Version 2.1

## C Target - Programme

Beschreibung der wichtigsten Komponenten, die zur Steuerung des Xenon-Gastargets nötig sind (s.a.Abb.40):

Gasflasche 1:	Druck $p_3$ Heizung HZ3	Temperatur $t_3$
Gasflasche 2:	Druck $p_4$ Heizung HZ4	Temperatur $t_4$
Leitungen:	Druck $p_6$	
Sicherheitsvolumen:	Druck $p_2$	
Pumpe P2:		mit Kühlfalle
Pumpe P1:	Druck $p_5$	(Vorpumpe)
Pumpe P3:		(H <sub>2</sub> O durch Leitungen)
Kühlfinger:	Heizung HZ2	Temperatur $t_2$
Target:	Druck $p_1$ Heizung HZ 1	Temperatur $t_1$

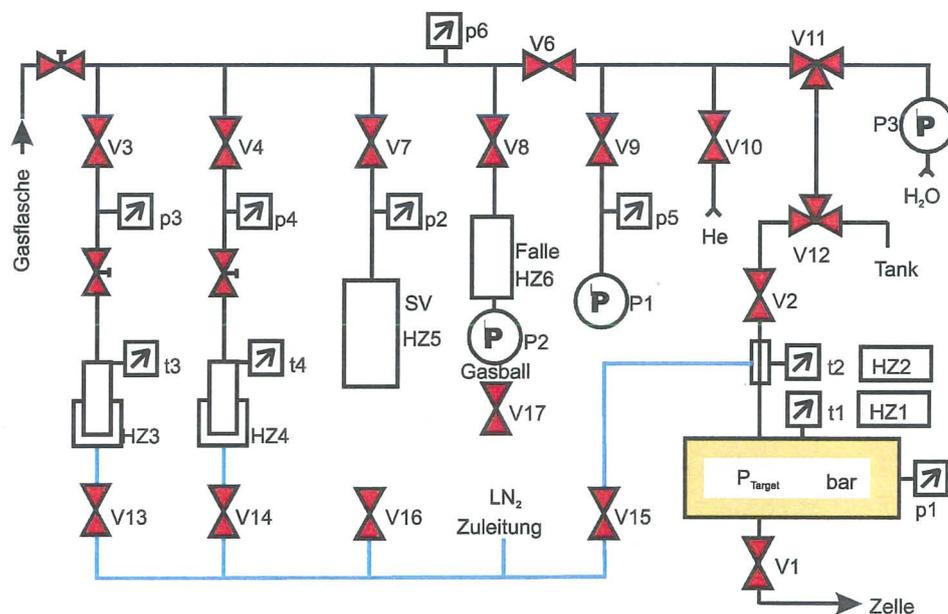


Abbildung 40: Übersichtsskizze zur Steuerung des Xenon-Gastargets mit Ventilen V, Heizungen HZ und Pumpen P

Auf den folgenden Seiten sind die Programme Nr. 5, 6, 7, 9 und 10, die bei der <sup>131</sup>Cs-Produktion zur Targetsteuerung verwendet wurden, im Detail beschrieben. Anhand von Abb.40 können die einzelnen Schritte nachvollzogen werden.

Programm 5 – Target und Sicherheitsvolumen evakuieren			
Nr.	Startbedingung	Ablauf	Zeitglied
1	$p_1 < p_{1/3} = 1,1 \text{ bar}$ $p_3 > p_{3/1} = 1050 \text{ mbar}$	Vorlauf Vakuumpumpe P2 ein	$T_1 = 180 \text{ s}$
2	$T_1 = 0$	Target und Sicherheitsvolumen evakuieren V7, V8, V6 und V2 offen; P2 in Betrieb	
3	$p_6 \leq p_{6/1} = 0,02 \text{ mbar}$		$T_2 = 600 \text{ s}$
E	$T_2 = 0$	ENDE	

Programm 6 – Gastransfer ins Target			
Nr.	Startbedingung	Ablauf	Zeitglied
1	$p_1 > p_{1/1} = 0,08 \text{ bar}$	Vorlauf Vakuumpumpe P2 ein	$T_4 = 180 \text{ s}$
2	$T_4 = 0$	Target evakuieren	
3	$p_6 < p_{6/2} = 0,02 \text{ mbar}$	Targetfinger mit LN2 kühlen (Stickstoffleitung) V15 & V16 öffnen; V16 offen bis $t_2 < t_{2/3} = -120^\circ\text{C}$	
4	$t_2 < t_{2/2} = -140^\circ\text{C}$	Gastransfer von Flasche 1 ins Target V3, V5, V6 und V2 offen	
5	$t_2 < t_{2/1} = -172^\circ\text{C}$	Restgas in Flasche 1 pumpen; Finger heizen V3, V5, V6 offen, V2 geschlossen; V13 offen; HZ2 ein	
E	$t_3 < t_{3/2} = -150^\circ\text{C}$	ENDE	

Programm 7 – Gastransfer in Flasche			
Nr.	Startbedingung	Ablauf	Zeitglied
1	”Start”-Taste	Flasche 1 und 2 mit LN2 kühlen V13 & V14 offen	
2	$t_3 < t_{3/2} = -150^{\circ}\text{C}$	Gastransfer vom Target in Flasche 1 V3, V5, V6 und V2 offen; V13 & V14 offen	
3	$t_3 < t_{3/1} = -165^{\circ}\text{C}$	Gastransfer d. Restgases in Flasche 2 V4, V5, V6 und V2 offen; V13 geschlossen, V14 offen	T7 = 60s
4	T7 = 0	Flasche 1 heizen HZ3 ein; V13 & V14 geschlossen	
E	$t_3 > t_{3/4} = 30^{\circ}\text{C}$	ENDE	

Programm 9 – Auswaschen des Targets			
1. Spannen der Schlauchpumpe 2. Markierung auf Wasserflasche 3. Starten des Programms			
Nr.	Startbedingung	Ablauf	Zeitglied
1	$p_1 > p_{1/1} = 0,08 \text{ bar}$ $p_3 > p_{3/1} = 1050 \text{ mbar}$	H <sub>2</sub> O-Leitung spülen V11 Richt. Pumpe, V12 Richt. Tank, P3 ein	T9 = 180s
2	T9 = 0	H <sub>2</sub> O ins Target pumpen V11 Richt. Pumpe, V12 Richt. Tank; V2 auf, P3 ein	
3	$p_1 > p_{1/4} = 1,6 \text{ bar}$	Target und Finger hochheizen V2 zu, P3 aus, V1 auf; HZ1 und HZ2 ein	
4	$t_1 > t_{1/5} = 70^{\circ}\text{C}$ $t_2 > t_{2/5} = 70^{\circ}\text{C}$	Target mit H <sub>2</sub> O nachspülen HZ1 und HZ2 aus; V2 auf, P3 ein, V11 Richt. Pumpe, V12 Richt. Target, V10 auf	T10 = 600 s
5	T10 = 0	H <sub>2</sub> O mit Helium in die Zelle drücken P3 aus, V11 Richt. He, V12 Richt. Target V1 & und V2 auf	T11 = 300 s
E	T11 = 0	ENDE	

Programm 10 – Target trocknen			
Nr.	Startbedingung	Ablauf	Zeitglied
1	$p_3 > p_{3/1} = 1050 \text{ mbar}$	Vorlauf Vakuumpumpen P1 & P2 ein	$T_5 = 300\text{s}$
2	$T_5 = 0$	Target mit P1 und Sicherheitsvolumen mit P2 evakuieren; Target trocknen V8, V9, V7 und V2 auf; V6 zu; HZ1 und HZ2 ein	
3	$t_1 = t_{1/6} = 80^\circ\text{C}$ $t_2 = t_{2/6} = 80^\circ\text{C}$	HZ1 und HZ2 aus	$T_6 = 600 \text{ s}$
4	$T_6 = 0$ $p_5 < p_{5/1} = 2 \text{ mbar}$	Target evakuieren V8, V6 und V2 offen; P1 aus; P2 ein	
5	$p_6 < p_{6/3} = 0,01 \text{ mbar}$		$T_7 = 600 \text{ s}$
E	$T_7 = 0$	P2 aus ENDE	

# D Prinzip von Auger- und Rutherford-Rückstreu - Spektroskopie

## D.1 Auger-Spektroskopie (AES)

AES ist eine oberflächenempfindliche Methode aus der Gruppe der elektronenspektroskopischen Verfahren und wird zur Bestimmung der chemischen Zusammensetzung dünner Schichten oder zum Nachweis von Kontaminationen auf Oberflächen eingesetzt. Die besondere Stärke der Methode liegt darin, daß die zugehörigen Informationen auch lateral mit einer hohen Ortsauflösung ermittelt werden können.

Durch den Beschuß einer Festkörperoberfläche mit Elektronen werden Elektronen aus inneren Schalen der Probenatome herausgeschlagen (Ionisation). Das so in einer Schale entstandene Loch kann durch Elektronen aus einer höheren Schale aufgefüllt werden. Die zwischen beiden Elektronenschalen bestehende Energiedifferenz überträgt das Atom unter bestimmten Bedingungen auf ein Elektron einer dritten, noch weiter außen liegenden Schale (Augerionisation). Dieses Augerelektron besitzt daher eine elementspezifische kinetische Energie, die zur Identifizierung des betreffenden Elements geeignet ist. Bei Benutzung eines feinfokussierten Elektronenstrahls als Sonde (Durchmesser ca.  $1\ \mu\text{m}$  bis herab zu  $10\ \text{nm}$ ) kann durch Rastern über einen ausgewählten Probenbereich ein Elementverteilungsbild der Probenoberfläche mit einer Ortsauflösung um  $20\ \text{nm}$  erstellt gemessen werden. In Verbindung mit der Festkörperzerstäubung durch Ionenbeschuß (Sputtering) können auch Elementtiefenprofile bzw. "3D-Elementverteilungen" ermittelt werden.

aus: [50]

## D.2 Rutherford-Rückstreu-Spektroskopie (RBS)

Rutherford Rückstreuspektroskopie (RBS) ist ein beschleunigergestütztes Analyseverfahren, das auf der Rutherford'schen Streuung in Rückwärtsrichtung (Streuwinkel  $> 90^\circ$ ) beruht. Die Rückstreuenergie  $E_1$  eines Projektils der Masse  $M_1$  und der Anfangsenergie  $E_0$ , das an einem Atom der Masse  $M_2$  elastisch gestreut wird, ist eine Funktion der Masse des Targetatoms  $M_2$  und des Rückstreuwinkels  $\Theta$  (s. Abb. 41). Damit wird eine Elementidentifikation der rückstreuenden Targetatome möglich (Massenbestimmung). Aus der Häufigkeit der Rückstreuung kann auf die Elementkonzentration geschlossen werden.

In der Praxis werden als Projektile  $\text{H}^+$ - und  $\text{He}^+$ -Ionen bei Energien von ca.  $1 - 2\ \text{MeV}$  benutzt. Damit überhaupt Rückstreuung auftritt muß gelten:  $M_2 > M_1$ .

Anwendungsgebiete der RBS sind

- Elementidentifikation
- chemische Zusammensetzung von Oberflächen
- Nachweis und Quantifizierung von Oberflächenverunreinigungen
- Tiefenverteilung von Elementen (Implantationsprofile)

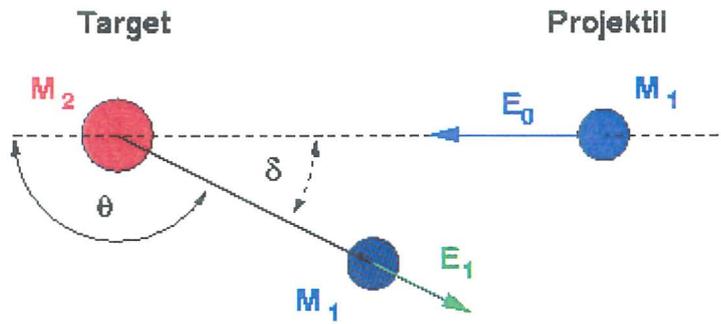


Abbildung 41: Das Prinzip der Rutherford Rückstreu-spektroskopie

- Schichtdickenmessung dünner Filme auf Oberflächen.

Das besondere an RBS ist, daß es ein absolutes Verfahren ist.

aus: [51]