

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

1249 83

3 10

12-82-851

Н.А.Лебедев, Э.Херрманн, Л.Эхн

ПРИГОТОВЛЕНИЕ  
ИЗОТОПНОГО ГЕНЕРАТОРА  $^{172}\text{Lu}$

Направлено в журнал "Радиохимия"

1982

Радионуклид  $^{172}\text{Lu}$  /  $T_{1/2} = 6,7$  д/, судя по спектру гамма-лучей, имеет сложную схему распада, которая к настоящему времени изучена недостаточно полно, и представляет интерес для дальнейших спектроскопических исследований. По периоду полураспада и характеру излучения он является удобным радиоактивным индикатором. Поэтому имеется постоянная потребность в этом изотопе.

Обычно препараты  $^{172}\text{Lu}$  получают на циклотроне в реакциях  $^{172}\text{Yb}(p,n)^{172}\text{Lu}$ ,  $^{169}\text{Tm}(\alpha,n)^{172}\text{Lu}$  или путем масс-сепарации смеси изотопов лютеция, выделенных из облученного протонами высокой энергии тантала<sup>1/1</sup>. Все способы характеризуются относительно большой трудоемкостью, а последний - дополнительно невысоким выходом, обусловленным низкой эффективностью масс-сепарации, и не позволяют регулярно получать требуемые препараты. В этом отношении более удобен генераторный способ получения  $^{172}\text{Lu}$ , принципиальная возможность осуществления которого имеется, поскольку материнский изотоп  $^{172}\text{Hf}$  является долгоживущим / $T_{1/2} = 1,87$  л/.

При облучении тантала протонами с энергией 660 МэВ, как показывают расчеты по известным эмпирическим формулам<sup>2/</sup>,  $^{172}\text{Hf}$  образуется с несколько большим /в 3-4 раза/ сечением, чем  $^{172}\text{Lu}$ . После выделения лантанидов основная часть гафния остается в растворе мишени. Если через несколько дней, когда распадутся короткоживущие изотопы, произвести тщательную очистку этого раствора от оставшихся, и вновь образовавшихся лантанидов, то позднее, используя вышеупомянутую методику<sup>1/1</sup>, можно периодически выделять моноизотопные препараты  $^{172}\text{Lu}$ .

До разработки эффективного способа масс-сепарации лантанидов<sup>3/</sup> лишь этот путь получения  $^{172}\text{Lu}$  был практически доступен и при необходимости использовался. Однако из-за низкой активности  $^{172}\text{Hf}$  в отдельных мишенях, обусловленной большим периодом полураспада этого изотопа и непродолжительными экспозициями при облучениях, соответственно низкой получается и активность дочернего изотопа. Кроме того, при каждом выделении лютеция наблюдаются значительные /до 20%/ потери гафния, так что этот процесс оказывается целесообразным повторять не более трех раз.

Обычный путь повышения активности гафния в мишени - существенное увеличение экспозиции при облучении - реализовать трудно, так как интенсивность протонного пучка ограничена по техническим причинам, а продолжительность облучений определяется лимитом времени на ускорителе и задачами получения короткоживущих изотопов, которые, как правило, являются главным объектом спектроскопических исследований. Эти трудности можно в значительной мере преодолеть, если гафний выделить из раствора нескольких танта-

ловых мишеней и фиксировать его на носителе, с которого лютеций легко удаляется.

Известная методика<sup>/4/</sup> выделения радиогафния из фторидных растворов танталовой мишени, основанная на соосаждении его с фторидами лантана и бария и включающая последующую катионообменную очистку, дает сравнительно низкий выход /около 40%/. Выход заметно снижается при обработке длительно хранящихся растворов, а также при увеличении общего объема раствора и количества тантала в нем, причем выход не удается существенно повысить пропорциональным увеличением количества носителей. В связи с этим нами была использована методика<sup>/5/</sup>, по которой гафний соосаждают с фторидом кальция. Полученный осадок растворяют в хлорной кислоте, содержащей нитрат алюминия. Гафний экстрагируют бензольным раствором теноилтрифторацетона /ТТА/ и реэкстрагируют в водную фазу 12M HCl. По данным<sup>/5/</sup>, химвыход гафния из мишени весом 2,5 г составляет 93±5%. Проверочные эксперименты с длительно хранящимися растворами подтвердили эти результаты и показали, что в техническом отношении эта методика не сложнее, чем предыдущая.

Для приготовления рабочего препарата гафния были использованы растворы четырех танталовых мишеней весом около 5 г каждая, облученных по 8-10 часов и обработанных с целью выделения радиолантанидов около 3 лет назад.

Перед выполнением процесса была определена общая кислотность раствора, концентрация тантала в нем и активность гафния /практически присутствовал только <sup>172</sup>Hf/. После коррекции состава раствора до требуемых параметров было произведено выделение гафния согласно вышеупомянутой методике<sup>/5/</sup>. Небольшое отличие состояло лишь в том, что для реэкстракции гафния из ограниченной фазы применяли меньший /в 3-4 раза/ объем HCl, чем рекомендовано по методике. Это несколько уменьшало выход гафния /≈ на 15%/, но позволяло получить более концентрированный препарат с пропорционально уменьшенным содержанием солевых примесей.

После двукратной реэкстракции было получено 25 мл солянокислого раствора, в котором активность гафния составила около 20 МБк /≈70%/. Затем реэкстракт упарили до 0,1-0,15 мл и разбавили 1 мл воды. Полученный слабокислый раствор был светло-желтого цвета /преимущественно за счет примесей железа, присутствия которых избежать очень трудно/ и содержал небольшое количество темного осадка /по-видимому, продукты разложения ТТА/. Этот осадок легко отделялся от раствора центрифугированием, но содержал значительное количество активности /≈50%/. В результате двукратной промывки осадка 0,5M HCl /по 0,5 мл/ активность его удалось снизить в 2 раза. Таким образом, потери гафния на этой стадии составили 25%. Основной и промывные растворы были объединены и использованы для приготовления генератора.

В работе<sup>/6/</sup> показано, что радиогафний из разбавленных растворов HCl хорошо сорбируется на экстракционно-хроматографической колонке с наполнителем из силикагеля, пропитанного раствором

ди-/2-этилгексил-/фосфорной кислоты /ДЭГФК/ в толуоле или эфире, и прочно удерживается на ней при вымывании лютеция 4±8M HCl. Эти данные без существенных изменений были использованы нами.

Для заполнения колонок применяли силикагель марки КСК-2,5. Из измельченного геля отбирали седиментацией в противотоке фракцию с размером частиц 30±40 мкм, высушивали, обрабатывали диметил-дихлорсиланом и пропитывали раствором экстрагента в толуоле или эфире /1:10/ до начала образования влажного порошка, который после тщательного перемешивания и выдержки в течение 10-15 минут становился внешне сухим. Расход толуольного раствора при этом составил 0,64 мл/г, а эфирного - 0,88 мл/г силикагеля. Затем порошки в течение суток выдерживали при 50°C, заливали их 0,1M HCl и под разряжением водоструйного насоса удаляли из пор воздух. Силикагель в виде суспензии переносили в колонку диаметром 3 мм и заполняли ее до высоты 30 мм. Гафний сорбировали пропусканием солянокислого раствора через приготовленную колонку. Было установлено, что степень сорбции гафния на обеих колонках примерно одинакова, но зависит от количества исходного раствора. Так, при пропускании через колонку раствора в количестве двух свободных объемов сорбируется около 85% гафния, а при пропускании 10 свободных объемов степень сорбции снижается до 70%. Эти результаты, явно не согласующиеся с высоким коэффициентом распределения гафния, можно объяснить частичным переходом его в слабо экстрагируемое димерное или коллоидное состояние. Напротив, кривые вымывания <sup>172</sup>Lu /см. рисунок/ различаются. На колонке с наполнителем, пропитанным толуольным раствором ДЭГФК, пик получается более острым и узким. В частности, 95% лютеция из этой колонки вымывается в 5 свободных объемах, в то время как из колонки второго типа - в 8-9 свободных объемах. Такое различие можно объяснить количеством и состоянием экстрагента в носителе.

С учетом изложенных результатов для приготовления рабочего генератора <sup>172</sup>Lu была применена колонка с наполнителем на основе толуольного раствора экстрагента. Сорбированный на ней гафний имел активность около 10 МБк, что позволяло регулярно получать препараты <sup>172</sup>Lu,

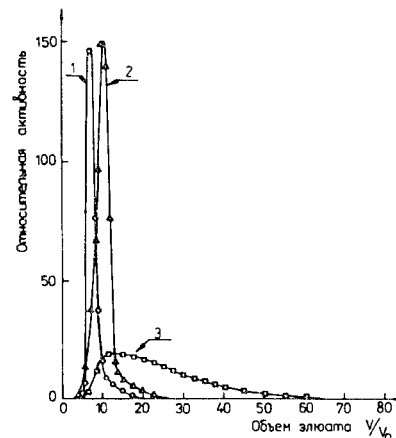


Рис.1. Кривые вымывания <sup>172</sup>Lu из экстракционной колонки. I - с толуольным раствором ДЭГФК, II - с эфирным раствором ДЭГФК, III - с толуольным раствором ДЭГФК через 1 год.

пригодные для проведения многих радиохимических и некоторых спектроскопических исследований. Экспериментальная проверка чистоты этих препаратов показала, что содержание гафния в них меньше 0,1%. Высокая прочность удерживания гафния носителем подтверждается тем, что наблюдаемое убывание активности генератора после десятикратного выделения лютеция в течение 1 года практически соответствует естественному распаду гафния.

Длительная эксплуатация генератора также показала, что кривая вымывания  $^{172}\text{Lu}$  со временем существенно изменяется и для выделения 90-95% элемента требуется пропускать через колонку 70-75 свободных объемов элюента. Такое замедленное выделение лютеция, по-видимому, связано с перераспределением элементов внутри зерен силикагеля и увеличением концентрации экстрагента из-за удаления части растворителя /толуола/.

Так как кроме увеличения продолжительности процесса получения препаратов  $^{172}\text{Lu}$  других отрицательных последствий не наблюдается, изготовленный генератор можно считать пригодным к длительной эксплуатации.

Авторы выражают благодарность В.Б.Бруданину за помощь в спектроскопических измерениях.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Лебедев Н.А., До Ким Тунг, Нгуен Гуинь Май. Авторское свидетельство СССР № 497824 от 21.01.74. Бюлл. ОИПОТЗ, 1979, № 27; с.145.
2. Рупп Э., Фенеш Т. ОИЯИ, 6-4998, Дубна, 1970.
3. Байер Г.-Ю. и др. Авторское свидетельство СССР № 331296 от 30.12.70. Бюлл. ОИПОТЗ, 1972, № 9, с.127.
4. Зайцева Н.Г., Джоу Мо Лун. Радиохимия, 1962, 4, с.738.
5. Daniels R.J., Grant P.M., O'Brien H.A., Jr. Int. J. of Nucl. Medicine and Biology, 1978, vol.5, p.11-17.
6. Nikolaizig E. Diplomarbeit, 1978, Technischen Universität, Dresden.

Рукопись поступила в издательский отдел  
13 декабря 1982 года.

Лебедев Н.А., Херрманн Э., Эхн Л. 12-82-851  
Приготовление изотопного генератора  $^{172}\text{Lu}$

Отработана методика приготовления изотопного генератора  $^{172}\text{Lu}$  и проверена его работоспособность во времени. Материнский изотоп  $^{172}\text{Hf}$  был выделен из фторидно-азотнокислого раствора тантала, облученного протонами с энергией 660 МэВ, соосаждением с фторидом кальция и экстракцией бензольным раствором теноилтрифторацетона, а затем фиксирован на экстракционно-хроматографической колонке с сорбентом на основе силикагеля и толуольного раствора ди/2-этилгексил/фосфорной кислоты. Общий химический выход  $^{172}\text{Hf}$  - около 45%.  $^{172}\text{Lu}$  элюируется 6М HCl. Объем элюента, необходимый для вымывания из колонки 90%  $^{172}\text{Lu}$ , со временем увеличивается от 5-6 свободных объемов колонки в начале эксплуатации генератора до 70 через 1-1,5 года. Потери  $^{172}\text{Hf}$  при единичном элюировании  $^{172}\text{Lu}$  не превышают 0,1%.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1982

Lebedev N.A., Herrmann E., Echn L. 12-82-851  
Preparation of  $^{172}\text{Lu}$  Generator

A method for preparation of  $^{172}\text{Lu}$  generator has been developed and dynamic stability has also been examined. Mother isotope  $^{172}\text{Hf}$  has been produced from water solution of fluoronitric acid of tantalum, irradiated with 660 MeV protons. Isolation of Hf from the solution involved: coprecipitation on  $\text{CaF}_2$ , dissolution of  $\text{CaF}_2$  and extraction with benzene solution of thenoylthreelfluoroacetone, adsorption on reverse phase chromatographic column filled with silicagel containing toluene solution of di(2-ethylhexyl)phosphoric acid. Total radiochemical yields of  $^{172}\text{Hf}$  has been found to be 45%.  $^{172}\text{Lu}$  from the column could be eluted with 6M HCl. The total volume of hydrochloric acid necessary for 90% elution of Lu increases from 5-6 to 70 free volumes during 1-1.5 years. The losses of  $^{172}\text{Hf}$  activity for one elution cycle does not exceed 0.1%.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.  
Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research, Dubna 1982

Перевод О.С.Виноградовой.