

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

95-258

P6-95-258

Н.Г.Зайцева, В.И.Стегайлов, В.А.Халкин,
Н.Г.Шакурн, Е.Т.Шишлянников, К.Г.Буков*

ПОЛУЧЕНИЕ РУТЕНИЯ-97
В РЕАКЦИИ $^{99}\text{Tc} (p, 3n) ^{97}\text{Ru}$
НА ВНУТРЕННЕМ ПУЧКЕ ПРОТОНОВ
ФАЗОТРОНА ОИЯИ

Направлено в журнал «Радиохимия»

*Институт физической химии РАН, Москва

1995

1. Введение

Рутений-97 – нейтронодефицитный изотоп Ru, элемента легкой платиновой группы, – имеет относительно короткий период полураспада, $T_{1/2} = 2,9$ дня. Он распадается e^- -захватом, в его гамма-спектре наблюдаются только две интенсивные линии, соответствующие гамма-квантам с энергией 216 кэВ (86%) и 324 кэВ (10,2%) [1].

Рутений имеет несколько степеней окисления, из которых наиболее устойчивы Ru(II), Ru(III), Ru(IV), Ru(VIII), и образует многочисленные простые и комплексные соединения [2-4]. Сочетания этих хороших, с точки зрения радиофармакологии, физических и химических свойств делает ^{97}Ru в перспективе полезным для ядерной медицины. Впервые такая оценка была сделана в 1970 году [5], и с тех пор непрерывно ведутся исследования в области радиофармацевтической химии соединений, меченных ^{97}Ru . Согласно литературным данным [6], можно получать многочисленные и разнообразные радиофармацевтические препараты (РФП) с ^{97}Ru , аналогичные по свойствам хорошо известным РФП с радионуклидами ^{67}Ga , ^{111}In , ^{99m}Tc , что способствует прогнозированию применения ^{97}Ru в ядерной медицине.

Исходя из химических свойств рутения и технеция очевидно, что многие Ru-содержащие препараты должны быть устойчивее ряда широко используемых препаратов с ^{99m}Tc , что позволяет говорить о вероятности получения тех соединений с ^{97}Ru , в которые нельзя было ввести ^{99m}Tc . Целый ряд экспериментов подтвердил перспективность применения ^{97}Ru при решении задач медицинской диагностики и терапии. Например, для радиоиммунотерапии получены стабильные соединения ^{97}Ru с моноклональными антителами [6,7]. Показано, что $^{97}\text{RuDTPA}$, где DTPA – анион диэтилентриаминпентауксусной кислоты, в некоторых случаях дает лучшие результаты, чем $^{99m}\text{TcDTPA}$ или $^{111}\text{InDTPA}$ при обследовании каналов спинномозговой жидкости [8].

Комплекс $^{97}\text{RuPIPIDA}$, где PIPIDA – анион N- α -p-изопропил-ацетанилид-иминоуксусной кислоты, можно успешно использовать вместо $^{99m}\text{TcPIPIDA}$ в тех случаях, когда требуются длительные обследования при заболеваниях печени и желчного пузыря. Диаг-

ностика этих заболеваний с использованием препаратов, меченных ^{99m}Tc , эффективна лишь в двух случаях из пяти [9]. Положительные результаты при диагностике опухолевых заболеваний дал ^{97}Ru -блеомицин, который одновременно выполняет роль химиотерапевтического агента [10]. Для этих же целей пригоден ^{97}Ru -трансферрин, накопление которого в опухолях в 3-5 раз выше, чем у ^{67}Ga -цитрата [11].

Исключительно хорошего качества скинтиграммы печени девяти пациентов в возрасте от 6 недель до 84 лет были получены с новым соединением ^{97}Ru -DISIDA-производным иминодиуксусной кислоты как альтернативным соединению ^{131}I -бенгальская роза [12].

Приведенные примеры не исчерпывают всех известных литературных данных, но позволяют сделать вывод, что если бы ^{97}Ru был широко доступен, т.е. относительно дешев, регулярно получался бы в больших количествах, то он нашел бы свое место в ряду радионуклидов, наиболее часто используемых в ядерной медицине. В настоящее же время он применяется лишь в отдельных исследованиях и отнесен к потенциально важным медицинским нуклидам.

Рутений-97 с высокой удельной активностью и в относительно больших количествах может быть получен в нескольких ядерных реакциях: $^{96}\text{Ru}(n,\gamma)^{97}\text{Ru}$, $\text{Mo}(^4\text{He},xn)^{97}\text{Ru}$, $\text{Mo}(^3\text{He},xn)^{97}\text{Ru}$, $\text{Rh}(p,X)^{97}\text{Ru}$, $\text{Ag}(p,X)^{97}\text{Ru}$, $^{99}\text{Tc}(p,3n)^{97}\text{Ru}$. В настоящее время реально его получают при облучении металлического родия протонами с энергией 70 МэВ, с выходом 1,4 мКи/мкА·ч [13], и в реакциях ядер гелия с энергией 30-35 МэВ с природным или обогащенным молибденом, с выходом около 100 мКи/мкА·ч [14,15,16]. В первом случае производство радионуклида возможно только при наличии сильноточного ускорителя с соответствующей энергией протонов и мишеней из металлического родия – дорогого благородного металла. Во втором случае рассчитывать на высокую производительность можно только при токах α -частиц в несколько сот микроампер на специализированных циклотронах.

Решить задачу крупномасштабного производства ^{97}Ru (получать кюриевые количества на момент конца облучения) представляется возможным, по нашему мнению, в случае, если в качестве мишени для протонной бомбардировки использовать технеций-99 [17,18].

Функция возбуждения ядерной реакции и выход нуклида

Функция возбуждения реакции $^{99}\text{Tc}(p,3n)^{97}\text{Ru}$ впервые была измерена нами в интервале энергий протонов от 20 до 100 МэВ известным методом стопки фольг [19]. Облучение мишеней проводили на пучках протонов линейного ускорителя И-100 Института физики высоких энергий в Протвино (Россия) и изохронного циклотрона У-120М Института ядерных исследований Чешской академии наук (Ржеж) протонами с энергией 100 МэВ и 35 МэВ соответственно. Результаты экспериментов хорошо совпали друг с другом и показали, что максимальное сечение образования ^{97}Ru ($440 \text{ мб} \pm 15\%$) достигается при $E_p = 32 \text{ МэВ}$. Выходы радионуклида из "толстой" мишени возрастают от 1 мКи/мкА·ч до 10,5 мКи/мкА·ч при увеличении энергии от 30 до 100 МэВ (рис.1).

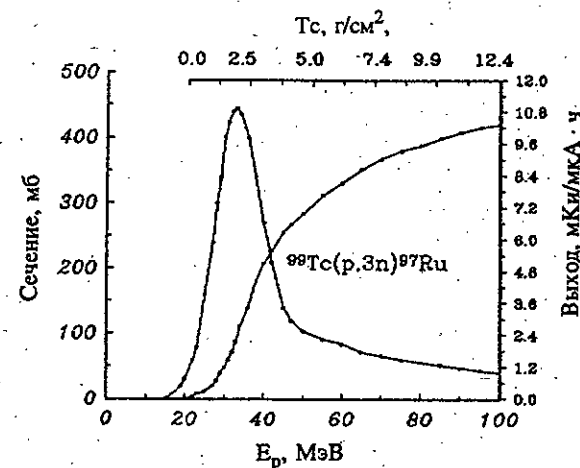


Рис.1. Сечение образования и выход ^{97}Ru в реакции $^{99}\text{Tc}(p,3n)^{97}\text{Ru}$

Во всем диапазоне энергий ^{97}Ru получается практически радиоизотопночистым, так как более легкие изотопы рутения имеют короткие периоды полураспада ($< 2 \text{ ч}$) [1] и сечения их образования меньше, чем у ^{97}Ru . Удельная активность, с учетом образования в ядерных реакциях стабильных изотопов ^{96}Ru , ^{98}Ru , ^{99}Ru , должна быть не ниже $5 \cdot 10^4 \text{ Ки/г}$.

Материал мишени

Металлический технеций - прекрасный материал для циклотронных мишеней, тепловыделение в которых может достигать 3 кВт/г и более. Это твердый, эластичный металл с удельным весом 11,5 г/см³, коррозионно-устойчивый до 300°C, обладающий высокой теплопроводностью и температурой плавления около 2500 К [20]. Использованию технеция в качестве материала мишени для производства ⁹⁷Ru в настоящее время, возможно, мешает отношение к технецию как к экзотическому и радиоактивному металлу. Применительно к мишеням, изготовленным из технеция для протонной бомбардировки, эти факторы вряд ли можно считать ограничительными и, кроме того, следует иметь в виду следующие обстоятельства.

Во-первых, содержание ⁹⁹Tc в отработанном топливе атомных электростанций достигает 1 кг на тонну урана. Его извлечение, восстановление до металла и изготовление мишеней, очевидно, можно сравнить по стоимости с получением обогащенных мишеней (например, ¹²⁴Xe и ²⁰³Tl для производства ¹²³I и ²⁰¹Tl) или с выделением ⁹⁹Mo для генераторов ^{99m}Tc.

Во-вторых, технеций отнесен к группе изотопов с низкой радиотоксичностью (группа В) [21], что позволяет работать в радиохимической лаборатории III класса с 5-6 граммами металла, а в лаборатории II класса - перерабатывать до 50 г технеция.

Изотоп ⁹⁹Tc ($T_{1/2} = 2,12 \cdot 10^5$ лет) - чистый β^- -излучатель с граничной энергией электронов 292 кэВ, что соответствует средней энергии электронов около 100 кэВ; активность на поверхности металла $2,6 \cdot 10^6$ β^- -частиц/см²·с, удельная активность элемента 17 мКи/г. Низкая энергия β^- -излучения в сочетании с высокой прочностью и тугоплавкостью металла практически исключают его распыление за счет агрегатной отдачи. Это позволяет относиться к металлическому технецию как к закрытому источнику излучения (перчатки, пинцет и легкий экран - достаточные средства индивидуальной защиты при подготовке мишеней из технеция к облучению).

В настоящее время производство ⁹⁷Ru в количествах порядка десятков кюри в год с использованием металлического технеция в качестве материала мишени нельзя организовать в России из-за

отсутствия специализированных высокоэнергетических ускорителей протонов с энергией 30 МэВ и выше. Но для постановки поисковых медико-биологических и радиофармакологических экспериментов можно регулярно получать ⁹⁷Ru в количествах 100-200 мКи в неделю на ускорителях, не предназначенных для коммерческой наработки радионуклидов. К таким ускорителям относится фазотрон Объединенного института ядерных исследований в Дубне.

Облучение, мишенное устройство

Облучение мишеней протонным пучком с интенсивностью 6-8 мкА и энергией от 20 до 660 МэВ проводится внутри вакуумной камеры ускорителя. На заданную величину радиуса протонной орбиты (заданную энергию протонов) мишени устанавливаются с точностью до миллиметра пробником с дистанционным управлением. Зависимость энергии протонов от радиуса орбиты в интервале от 40 до 120 см показана на рис.2.

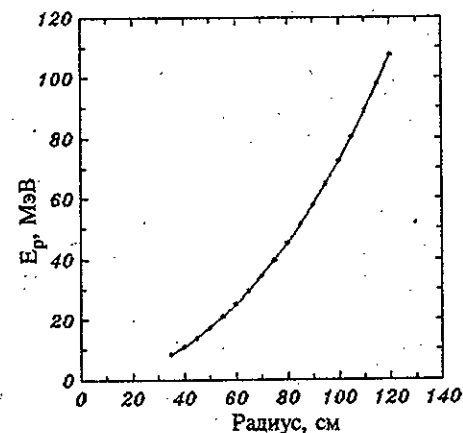


Рис.2. Зависимость энергии протонов от радиуса их орбиты внутри камеры фазотрона

Шаг спиральной орбиты для протонов в вакуумной камере фазотрона имеет расстояние между витками порядка 250 мкм. Поэтому активность, наведенная на мишени высотой 15-20 мм и толщиной 4-5 г/см², быстро падает с увеличением расстояния от края мишени в направлении увеличения радиуса орбиты: свыше 90% продуктов

ядерных реакций сконцентрировано в первых трех миллиметрах (рис.3).

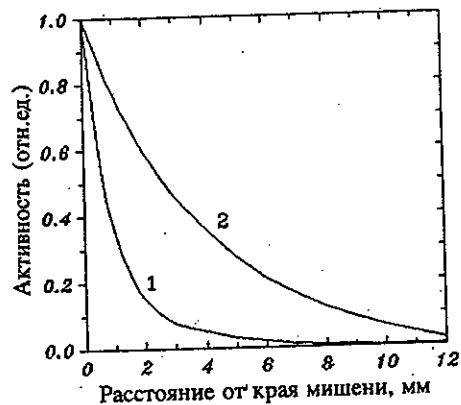


Рис.3. Распределение активности по глубине мишени:
1 - Al, $h=15$ мм, $l=12,5$ мм, 5 г/см²;
2 - Cu, $1,5 \times 1,5$ мм, $0,2$ г/см²

Из рисунка видно, что с уменьшением вертикальных размеров и толщины мишени спад активности в радиальном направлении происходит менее резко. Вертикальное распределение интенсивности внутреннего пучка при энергии протонов 60 МэВ, построенное по измерениям активации медной мишени толщиной 4 г/см², показано на рис.4.

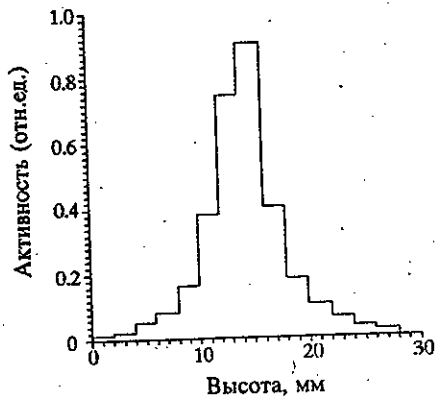


Рис.4. Вертикальное распределение интенсивности внутреннего пучка протонов. $E_p = 60 \pm 10$ МэВ; мишень - Cu, 4 г/см²

Результаты экспериментов по изучению распределения внутреннего пучка протонов фазотрона на мишенях были использованы при разработке конструкции мишени из металлического технеция (рис.5).

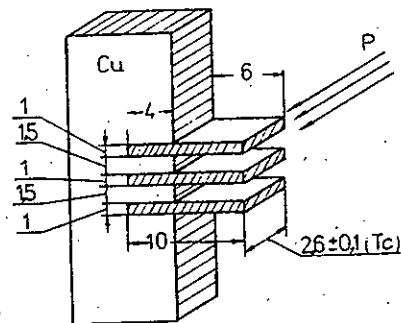


Рис.5. Конструкция мишени для облучения металлического технеция внутренним пучком протонов фазотрона

Мишень состоит из трех пластинок толщиной 3 г/см² по пробегу протонов, запрессованных в медный блок, который крепится к водоохлаждаемой головке пробника. Масса Tc в мишени составляет около 1 г. Конструкция и расположение Tc-пластинок исключают их нагрев протонным пучком до температуры плавления и, следовательно, нет потерь Tc за счет испарения в вакууме. По нашим оценкам, при такой конструкции мишень "захватывает" не менее 80% пучка.

Радионуклидный состав облученной мишени

Как показали исследования [19], активность Tc-мишени после облучения протонами с энергией 100 МэВ обусловлена примерно в равной степени как изотопами рутения, так и изотопами технеция, получающимися в реакциях: $^{99}\text{Tc}(p, xn)^{100-x}\text{Ru}$ и $^{99}\text{Tc}(p, pxn)^{99-x}\text{Tc}$. Изотопы рутения с массой 96,98 и 99 - стабильные, с массой 92 - 95 имеют короткий период полураспада ($\leq 1,65$ ч), и только ^{97}Ru ($T_{1/2}=2,9$ дня) определяет активность рутения через 12 часов после конца облучения.

Что касается изотопов технеция, то вклад в их образование в мишени Tc определяется не только ядерными реакциями, но

и распадом изотопов Ru. Радионуклидный состав включает ^{95m}Tc ($T_{1/2}=61$ дн; ИП, К-захват, $E_\gamma=204$ кэВ, 80%; 582 кэВ, 44% и др.); ^{95g}Tc ($T_{1/2}=20$ ч; К-захват, $E_\gamma=766$ кэВ, 94%); ^{96}Tc ($T_{1/2}=4,35$ дн; К-захват, $E_\gamma=778$ кэВ, 100%; 813 кэВ, 82%; 850 кэВ, 99%); ^{99m}Tc ($T_{1/2}=6,01$ ч; ИП, $E_\gamma=141$ кэВ, 85%) и короткоживущие нуклиды с массой 92,93,94 ($T_{1/2}\leq 4,9$ ч).

С уменьшением энергии налетающих протонов активность изотопов ^{95}Tc и ^{96}Tc в мишени резко падает. Так, выход ^{95m}Tc при $E_p=100$ МэВ составляет около 300 мКи/мкА·ч, а при энергии протонов вдвое меньшей - всего 5-7 мКи/мкА·ч, и исчезающе малой по сравнению с ^{97}Ru будет активность изотопов Tc при $E_p=30$ МэВ [19]. Все это говорит о том, что при необходимости технеций-99 можно регенерировать из практически неактивных технологических отходов (не считая собственной активности ^{99}Tc) уже через полгода после отделения рутения. Таким образом, то, что производственные отходы, в данном случае, не содержат долгоживущих радиотоксичных продуктов ядерных реакций, как это имеет место, например, при извлечении ^{99}Mo из облученного тепловыми нейтронами ^{235}U , весьма важный с экологической и экономической точек зрения фактор, поскольку не возникает необходимости в переработке и длительном хранении этих отходов.

Величина наработки ^{97}Ru

Представленная на рис.5 мишень предназначена для облучения протонами с начальной энергией 50 ± 1 МэВ. При этой оптимальной энергии, как показывают результаты [19], выход ^{97}Ru на конец облучения достигает 7 мКи/мкА·ч при относительно небольшом вкладе в общую активность мишени других радионуклидов. Если поднять энергию протонов до 60 МэВ, то выход ^{97}Ru возрастает всего на 15%, при этом толщина мишени Tc увеличивается до $4,6$ г/см², а общая активность мишени увеличивается на порядок [19]. Отсюда следует, что для получения ^{97}Ru в реакции $^{99}\text{Tc}(p,3n)$ целесообразнее использовать протоны с энергией не выше 50 МэВ.

Количество ^{97}Ru , которое реально получается за один час работы фазотрона ОИЯИ, определяли при экспозициях от 10 до

30 минут и максимальном токе протонов около 8 мкА. Активность ^{97}Ru (мКи/ч) в облученном металлическом технеции рассчитывали по результатам спектрометрических измерений интенсивности гамма-линий с энергией 216 кэВ и 324 кэВ по формуле

$$Y = \frac{S_i \mu_i}{3,7 \cdot 10^7 t_b \delta_i \varepsilon_i t_m e^{-\lambda t_c}}$$

где S_i - число зарегистрированных γ_i -квантов,
 μ_i - коэффициент поглощения γ_i -квантов в металлическом Tc,
 t_b - время облучения, ч,
 t_m - продолжительность измерения, с,
 t_c - время после конца облучения до начала измерения, ч,
 λ - константа распада радионуклида,
 δ_i - эффективность регистрации γ_i -квантов детектором,
 ε_i - относительное количество γ_i -квантов на распад.

Измерения активности образцов проводили на скintилляционном гамма-спектрометре с кристаллом NaI(Tl) (63x63 мм, разрешение ~8%), созданном на базе ПЭВМ типа РС/АТ 286, и в отдельных случаях на спектрометре с Ge(Li)-детектором и 4096-канальным анализатором в стандарте КАМАК, соединенным для обработки результатов с ПЭВМ типа РС/АТ 386.

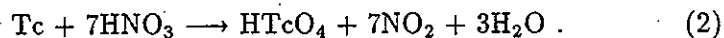
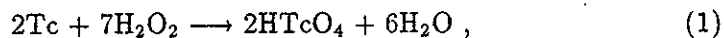
Как и ожидалось, наработка ^{97}Ru в выбранных условиях ($E_p=50$ МэВ, ток ~8 мкА) оказалась достаточно высокой - 40-50 мКи/ч на конец облучения. Следует заметить, что такие количества ^{97}Ru можно получить в реакциях $^4\text{He}(35$ МэВ) с молибденом только при токах ускоренных ионов свыше 500 мкА.

Радиохимическое выделение ^{97}Ru из облученного металлического технеция

Задача радиохимической переработки мишени металлического технеция при общей ее активности 1-2 Ки с целью выделения радионуклидночистых и без добавок носителя препаратов ^{97}Ru была решена нами на основе известных химических свойств технеция и рутения [2-4,22-24].

Вначале предполагалось, что могут возникнуть трудности, связанные с процессом растворения металлического Tc и последующим влиянием технециевой кислоты при относительно высокой ее

концентрации на поведение ультрамалых количеств рутения в полученных растворах. Согласно литературным данным, металлический технеций растворяется в перекиси водорода (1) или азотной кислоте (2):



По нашим наблюдениям, растворение компактного металла в перекиси водорода действительно происходит, но очень медленно: пластинка Тс массой 0,4 г с поверхностью 0,8 см² растворялась в 15 мл 30% Н₂О₂ в течение трех дней. Нагревание и подкисление раствора на скорость растворения не влияли. В 13М ННО₃ при 100°С металлический Тс растворялся за 2-3 ч, и, как показали контрольные измерения, потерь рутения и технеция в процессе растворения не было. При массе облученного металла ~1 г и объеме азотной кислоты 10 мл концентрация НТсО₄ в полученном растворе составляла 1 моль/л. В таком растворе микроколичества рутения, очевидно, находятся в форме нитрозилрутенатов – чрезвычайно прочных соединений, которые разрушаются только при окислении элемента до восьмивалентного состояния.

Известно, что нитрозилрутенаты легко окисляются КЮ₄ или (NH₄)₂S₂O₈(Ag) до тетраоксида рутения, как в азотнокислых, так и в сернокислых растворах. Он отгоняется из этих растворов менее чем за 30 мин при температуре 70-90°С и барботировании воздуха через раствор со скоростью 100 мл/мин [25]. Дистилляция из водных растворов при температурах ниже 100°С – свойство весьма редкое для других элементов. Именно на этом свойстве была основана разработанная нами методика разделения граммовых количеств технеция и наногаммовых количеств рутения с высоким коэффициентом очистки в одностадийном процессе, схема которого (рис.6) и описание приводятся ниже.

Облученную мишень металлического Тс массой около 1 г растворяли в 10 мл конц. ННО₃ при нагревании на кипящей водяной бане с одновременным пропусканием тока воздуха над поверхностью раствора для удаления окислов азота. Газы и возможные радиоактивные примеси поглощали в ловушках с раствором NaOH.

Полученный азотнокислый раствор, содержащий ТсО₄⁻ и радиорутений, переводили в сернокислый, добавляя равный объем 11М Н₂SO₄ и упаривая смесь до половины объема (до температуры кипения сернокислого раствора 160°С). Пары азотной кислоты удаляли с током воздуха, проходящим через ловушки так же, как и при растворении технеция.

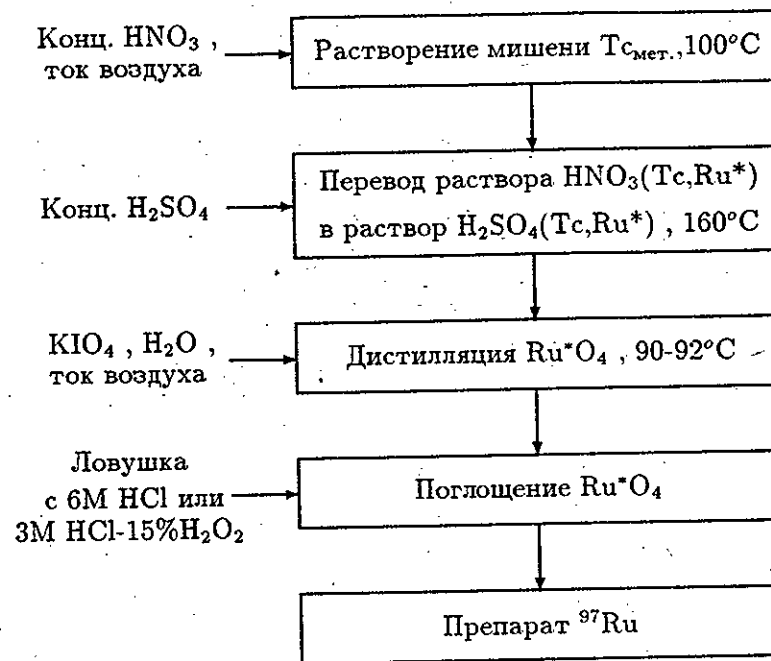


Рис.6. Схема метода радиохимического выделения ⁹⁷Ru из металлического Тс, облученного протонами на внутреннем пучке фазотрона

Контрольные измерения активности поглощающих растворов в ловушках показали, что с парами азотной кислоты уносилось <<1% НТсО₄, а следов рутения, как и следовало ожидать [26,27], не было обнаружено. Полученный сернокислый раствор разбавляли водой до концентрации 5-6 моль/л и переносили его в прибор для дистилляции, в который было введено 1,0-1,5 г КЮ₄. Раствор нагревали на водяной бане до ~90°С и в течение 20-30 минут отгоняли Ru*О₄ в токе воздуха, барботирующем через раствор со скоростью 100-

200 мл/мин. Рутений поглощался в ловушке с раствором 5 мл 6M HCl или 5 мл 3M HCl - 15% H₂O₂, в котором Ru(VIII) восстанавливался до Ru(III). Этот солянокислый раствор при необходимости сокращения его объема можно упарить без потерь рутения.

Весь процесс от начала растворения технеция до получения солянокислого раствора рутения занимает 6-7 часов. Как показали результаты экспериментов, это время можно сократить минимум на два часа, если дистилляцию рутения проводить непосредственно из азотнокислого раствора сразу после растворения мишени и введения в него KIO₄. Рутений количественно выделяется из азотнокислого раствора, содержащего макроколичества технеция и KIO₄, причем поглощающий раствор после отгонки рутения не содержит примесей технеция. Однако при этом не исключена вероятность образования нитрозо-трихлоро-рутениевой кислоты в результате реакции восстановления RuO₄ в солянокислой среде окисью азота [28], которая образуется в реакциях фото- и радиолитического разложения азотной кислоты и также поступает в ловушку с током воздуха. Поведение нитрозосоединений микроколичеств рутения при последующих синтезах меченых радиофармацевтических препаратов требует дополнительных исследований в радиофармхимии. Поэтому было решено ввести операцию перевода азотнокислого раствора в сернокислый. Это несколько удлиняет процесс, но дает возможность получать ⁹⁷Ru в виде хлоридов, которые обычно и служат исходными соединениями при приготовлении ⁹⁷Ru-РФП.

Химический выход ⁹⁷Ru в описанном методе равен 95-98%, причем потери рутения связаны в основном с сорбцией и восстановлением RuO₄ на стенках прибора, вследствие чего требуется предварительная обработка его внутренней поверхности окислителем [29]. С целью снижения адсорбционных потерь рутения в дистилляционном приборе были предусмотрены короткий путь газового потока между испарительной и поглотительной частями, а также относительно небольшая поверхность, которую омывает этот газовый поток.

Гамма-спектрометрический анализ конечного солянокислого раствора ⁹⁷Ru показал отсутствие примесей технеция (не обнаружены изотопы ^{95m}Tc, ⁹⁶Tc) (рис.7), следовательно, возможный унос технеция в потоке воздуха с каплями сернокислого раствора составляет менее 10⁻²%, а коэффициент очистки более 10⁴.

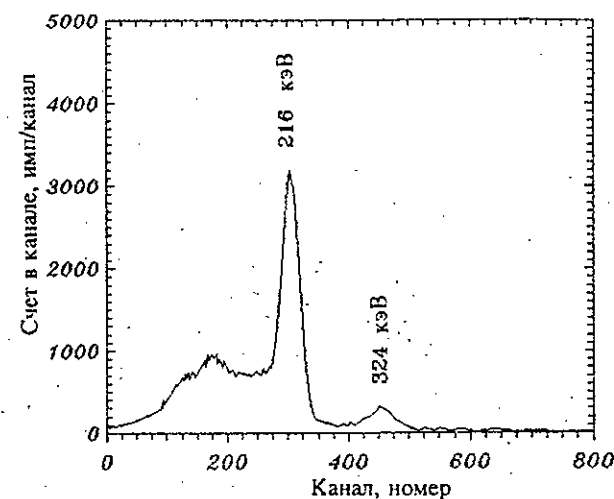


Рис.7. Гамма-спектр солянокислого препарата ⁹⁷Ru, измеренный скintилляционным спектрометром с кристаллом NaI(Tl)

Заключение

Полученные на фазотроне ОИЯИ экспериментальные данные по облучению ⁹⁹Tc и выделению ⁹⁷Ru позволяют прогнозировать количества его наработки. Так, проводя облучение мишеней металлического технеция протонным пучком с энергией 50 МэВ при токе 6-8 мкА в течение 8 часов, с учетом последующей радиохимической обработки, через 70 часов после конца облучения можно доставлять не менее 150 мКи ⁹⁷Ru в соответствующие радиофармацевтические и радиобиологические лаборатории и клиники.

Результаты проведенных радиохимических исследований показали, что разработанная дистилляционная методика количественного отделения ультрамикроколичеств рутения-97 от макроколичеств технеция-99 дает хорошо воспроизводимые результаты, не имеет сложных и трудоемких операций, относительно непродолжительна по времени (6-7 ч), не требует дорогих и редких реактивов и сложного оборудования, проста для выполнения за биологической защитой и имеет небольшой объем (<100 мл) радиоактивных отходов. Эта методика может быть положена в основу при создании

технологического процесса получения препаратов ^{97}Ru с высокой удельной объемной активностью в форме, необходимой для последующего синтеза меченых ^{97}Ru -радиофармпрепаратов.

В заключение авторы выражают благодарность персоналу фототрона за проведение облучений, В.И.Соболеву за помощь в работе и Л.М.Онищенко за постоянный интерес к исследованиям.

Работа поддержана грантом 200/182 Института диагностических систем Всемирной лаборатории (Москва, Россия).

Литература

1. Reus U., Westmeier W. Gamma-Ray Catalog from Radioactive Decay. Atomic Data and Nucl. Data Tables, vol.29,N2, Part 1(1983).
2. Автокротова Т.Д. Аналитическая химия рутения. АН СССР, М., 1962.
3. Звягинцев О.Е., Колбин Н.И., Рябов А.Н., Автокротова Т.Д., Горюнов А.А. Химия рутения. Наука, М., 1965.
4. Ливингстон С. Химия рутения, родия, палладия, осмия, иридия, платины. Мир, М., 1978, с.54.
5. Subramanian G., McAfee J.G., Poggenberg J.K. J.Nucl.Med. 1970, Vol.11, p.365.
6. Srivastava S.C., Richards P., Meinken G.E. et al. Radiopharmaceuticals - Structure Activity Relationships, Ed.Spencer R.P., N.Y., L., et al., 1981, p.207.
7. De Nardo S.J., Jungerman J.A., De Nardo G.L. et al. Proceed. Int. Symp. on the Developing Role of Short-lived Radionuclides in Nuclear Medicine Practice. Conf.-820523 (DE82008258),1985,p.401.
8. Oster Z.H., Som P., Gil M.C. et al. J.Nucl.Med. 1981, Vol.22, p.269.
9. Schachner E.R., Gil M.C., Atkins H.L. et al. J.Nucl.Med. 1981,Vol.22,p.352.
10. Shao H.S., Meinken G.E., Srivastava S.C. et al.,J.Nucl.Med. 1986,Vol.27,p.1044.
11. Som P., Oster Z.H., Matsui K. et al., Eur.J.Nucl.Med. 1983, Vol.8,p.491.
12. Zanzi I., Srivastava S.C., Meinken G.E. et al., J.Nucl.Med. 1986,Vol.27,p.1072.
13. Lagunas-Solar M.C., Avila M.J., Navarro N.J., Johnson P.C. Int.J.Appl.Radiat.Isot.,1983,Vol.34,p.915.
14. Comparetto G., Qaim S.M., Radiochim.Acta. 1980.Vol.27,p.177.
15. Silvester D.J., Helus F., Maier-Borst W., J.Labelled. Comp. Radiopharm.,1979,Vol.16,p.226.
16. Ramamoorthy N., Das M.K., Sarkar B.R., Mani R.S., Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds. Proceed.Int. Conf.22-26 Oct.,1984, Tokyo.IAEA, Vienna,1985,p.107.
17. Lebowitz E., Kinsley M., Klotz P. et al. J.Nucl.Med.,1974, Vol.15,p.511.
18. Richards P., Lebowitz E., Stang L.G. Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds. Proceed.Int.Symp.,1973, Copenhagen, IAEA, Vienna,1973,Vol.1,p.325.
19. Zaitseva N.G., Rurarz E., Vobecky M. et al. Radiochim.Acta, 1992,Vol.56,p.59.
20. Спицин В.И., Кузина А.Ф., Технеций. Наука, М., 1981.
21. Нормы радиационной безопасности НРБ-76, Атомиздат, М., 1978. с.28
22. Гинзбург С.И., Езерская Н.А., Прокофьева И.В. и др. Аналитическая химия платиновых металлов. Наука, М., 1972.
23. Лаврухина А.К., Поздняков А.А. Аналитическая химия технеция, прометия, аstatина и франция. Наука, М., 1966,с.7.
24. Schwochau K., Radiochim.Acta. 1983,Vol:32,p.139.
25. Горюнов А.А., Свешникова Л.Л., ЖНХ.1961,т.6,с.1543.
26. Cains P.W., Yewer K.C., Waring S., Radiochim.Acta.1992, Vol.56,p.99.
27. Sato T., J.Radioanal.Nucl.Chem. 1990,Vol.139,p.25.
28. Звягинцев О.Е., Курбанов А., ЖНХ, 1958, т.3, с.2424.
29. Krttil J., Mencl J., Bulovic V., Radiöchem.Radioanal. Lett.1971,Vol.6,p.219.

Рукопись поступила в издательский отдел
15 июня 1995 года.