EUR 4619 d

KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

Isotopengeneratoren Neuentwicklungen, Weiterentwicklung und Prüfung Handelsüblicher Generatoren

(Abschlussbericht über die Forschungsarbeiten in der Periode vom 1. Oktober 1966 bis 30. September 1969)

von

H. BERNHARD und K.H. LIESER (TH Darmstadt)

EUROPEAN COMMUNITY INFORMATION SERVICE WASHINGTON, D. C.

1971



Bericht abgefasst von der Technischen Hochschule Darmstadt - Deutschland Lehrstuhl für Kernchemie Vertrag Euratom/Prof. Dr. K.H. LIESER Nr. 089-66-10 RISD

HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, dass die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen :

keine Gewähr das ür übernehmen, dass die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind, oder dass die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstösst;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 11,— FF 16,60 FB 150,— Lit. 1.870,— Fl. 11,—

verkauft.

Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.

Gedruckt von Smeets, Brüssel Luxemburg, März 1971

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.

EUR 4619 d

KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

Isotopengeneratoren Neuentwicklungen, Weiterentwicklung und Prüfung Handelsüblicher Generatoren

(Abschlussbericht über die Forschungsarbeiten in der Periode vom 1. Oktober 1966 bis 30. September 1969)

von

H. BERNHARD und K.H. LIESER

mit Dormotodt)

EUR 4619 d

ISOTOPE GENERATORS - NEW DEVELOPMENTS, IMPROVEMENTS, TESTING OF COMMERCIAL GENERATORS (Final report on the research work carried out from October 1, 1966 to September 30, 1969) by H. BERNHARD (TH Darmstadt) and K.H. LIESER (TH Darmstadt)

Commission of the European Communities Report prepared by Technische Hochschule Darmstadt (Germany) Lehrstuhl für Kernchemie Contract Euratom/Prof. Dr. K.H. LIESER No. 089-66-10 RISD Luxembourg, March 1971 - 106 Pages - 13 Figures - B.Fr. 150,—

The following commercial generators were subjected to long-term tests:

J-132 generator (Buchler), Sr-87m generator (Buchler and Philips-Duphar),
Tc-99m generator (Buchler and Philips-Duphar). The claims of the construction firm with regard to the operational safety and purity of the daughter nuclides

EUR 4619 d

ISOTOPE GENERATORS - NEW DEVELOPMENTS, IMPROVEMENTS, TESTING OF COMMERCIAL GENERATORS (Final report on the research work carried out from October 1, 1966 to September 30, 1969) by H. BERNHARD (TH Darmstadt) and K.H. LIESER (TH Darmstadt)

Commission of the European Communities Report prepared by Technische Hochschule Darmstadt (Germany) Lehrstuhl für Kernchemie Contract Euratom/Prof. Dr. K.H. LIESER No. 089-66-10 RISD Luxembourg, March 1971 - 106 Pages - 13 Figures - B.Fr. 150,—

The following commercial generators were subjected to long-term tests: J-132 generator (Buchler), Sr-87m generator (Buchler and Philips-Duphar), Tc-99m generator (Buchler and Philips-Duphar). The claims of the construction firm with regard to the operational safety and purity of the daughter nuclides

and

RISD

ZUSAMMENFASSUNG

Die folgenden handelsüblichen Isotopengeneratoren wurden langfristig geprüft: J-132 Generator (Buchler), Sr-87m-Generator (Buchler und Philips-Duphar), Tc-99m-Generator (Buchler und Philips-Duphar). Hinsichtlich Betriebssicherheit und Reinheit der Tochternuklide konnten die Angaben der Lieferfirmen bestätigt werden. Nur bei längerer Benutzung fielen die Leistungen der Generatoren zum Teil deutlich ab.

Außerdem wurden in der Literatur beschriebene Verfahren zur Gewinnung der folgenden Radionuklide näher untersucht: Y-90, Ba-137m, In-115m, La-140. Nach einigen Verbesserungen und bei Beachtung gewisser Vorsichtsmaßnahmen erscheint die Verwendung dieser Verfahren für die Gewinnung der erwähnten Radionuklide in Isotopengeneratoren möglich, zumindest für beschränkte Betriebszeiten.

Das Schwergewicht der Untersuchungen lag auf dem Gebiet der Neuentwicklungen von Isotopengeneratoren. Als besonders vorteilhaft erwies sich ein Ba-137m-Generator auf der Basis von Eisenhexacyanoferrat auf Eisenspänen. Dieser Generator besitzt nahezu unbegrenzte Verwendbarkeit. Ein verhältnismäßig gut brauchbarer Generator für die Abtrennung von Rh-103m aus Pd-103 wurde ebenfalls entwickelt. Sehr gute Ergebnisse lieferte ein Generator für die Gewinnung von Kr-83m aus Rb-83.

Ferner werden ein neuer Generator für die Abtrennung von Sr-87m aus Y-87 sowie ein Generator für die Gewinnung von Fr-223 aus Ac-227 beschrieben.

SCHLAGWÖRTER

BATTERIES
IODINE 132
STRONTIUM 87
TECHNETIUM 99
TESTING
PRODUCTION
YTTRIUM 90
BARIUM 137
INDIUM 115
LANTHANUM 140
RHENIUM 103
PALLADIUM 103
KRYPTON 83
FRANCIUM 223

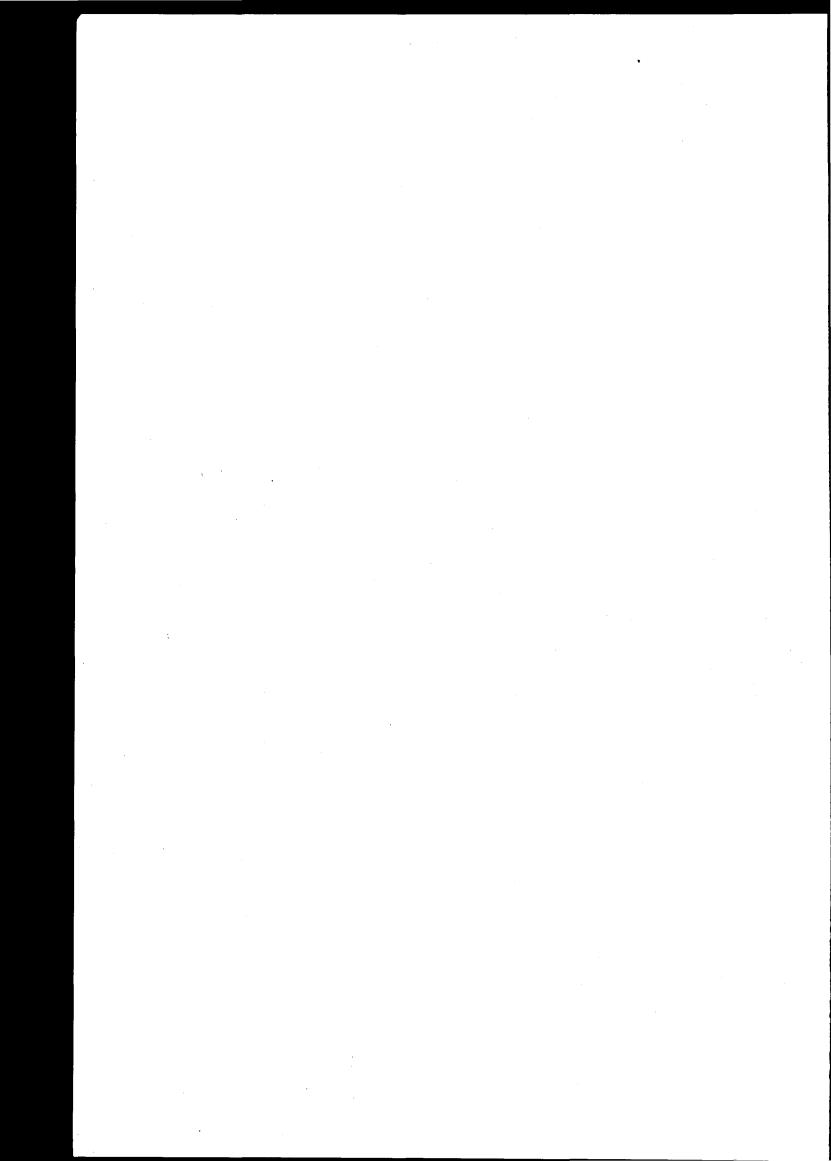
Inhaltsverzeichnis

| 1. Einleitung | 7 |
|------------------------------------------------------------------------|------|
| 2. Handelsübliche Isotopengeneratoren und ihre medizinische Verwendung | 9 |
| | 9 |
| 2.1. Sr-87m-Generator 1) Übersicht | 9 |
| 2) Besprechung der einzelnen Melksysteme | 10 |
| 2.2. In-113m-Generator | 12 |
| 1) Übersicht | 12 |
| 2) Besprechung der einzelnen Melksysteme | 13 |
| 2.3. Ga-68-Generator | 14 |
| 1) Übersicht | 14 |
| 2) Besprechung der einzelnen Melksysteme | 15 |
| 2.4. Tc-99m-Generator | 15 |
| 1) Übersicht | 15 |
| 2) Besprechung der einzelnen Melksysteme | 17 |
| 2.5. Re-188-Generator | 18 |
| 1) Übersicht | 18 |
| 2) Besprechung der einzelnen Melksysteme | 18 |
| 2.6. I-132-Generator | 19 |
| 1) Übersicht | 19 |
| 2) Besprechung der einzelnen Melksysteme | 19 |
| 3. Prüfung handelsüblicher Isotopengeneratore | n 20 |
| 3.1. I-132-Generator der Fa. Buchler | 20 |
| 1) Beschreibung der Versuche | 20 |
| 2) Diskussion der Ergebnisse | 21 |
| 3.2. Sr-87m-Generator der Fa. Buchler | 22 |
| 1) Beschreibung der Versuche | 22 |
| 2) Diskussion der Ergebnisse | 22 |

^{*)} Manuskript erhalten am 22. Dezember 1970

| 3.3. | Sr-87m-Generator der Fa. Philips-Duphar | 24 |
|-------|-----------------------------------------------------------|------------|
| | 1) Beschreibung der Versuche | 24 |
| | 2) Diskussion der Ergebnisse | 25 |
| 3.4. | Tc-99m-Generator der Fa. Buchler | 26 |
| | 1) Beschreibung der Versuche | 2 6 |
| | 2) Diskussion der Ergebnisse | 27 |
| 3.5. | Tc-99m-Generator der Fa. Philips-Duphar | 28 |
| | 1) Beschreibung der Versuche | 28 |
| | 2) Diskussion der Ergebnisse | 29 |
| 4. Pi | rüfung einiger in der Literatur beschriebener Melksysteme | 31 |
| 4.1. | Y-90-Generator nach Doering, Tucker und Stang | 31 |
| | 1) Durchführung der Melkoperationen und Meßergebnisse | 31 |
| | 2) Elutionsverhalten des Generators | 32 |
| | 3) Zusammenfassung | 33 |
| 4.2. | Ba-137m-Generator nach Blau, Zielinsky und Bender | 33 |
| | 1) Meßergebnisse | 34 |
| | 2) Zusammenfassung der Ergebnisse | 34 |
| 4.3. | In-115m-Generator nach J. Törkö | 35 |
| | 1) Meßmethoden | 35 |
| | 2) Zusammenfassung | 36 |
| 4.4. | La-140-Generator nach K. H. Lieser und K. Bächmann | 36 |
| • | 1) Bestimmung der Aktivitätsverteilung im Eluat | 37 |
| | 2) Durchführung der Melkoperationen | 38 |
| 5. Ne | euentwicklungen | 39 |
| 5.1. | Ba-137m-Generator auf der Basis von Eisenhexacyanoferrat | 39 |
| | 1) Herstellung des Austauschers | 40 |
| | 2) Bestimmung der Kapazität für Cäsium | 40 |
| | 3) Bestimmung der Verteilungskoeffizienten | 4 l |
| | 4) Kinetisches Verhalten | 41 |
| | 5) Herstellung der Generatoren | 42 |
| | 6) Diskussion der Ergebnisse | 43 |
| | 7) Zusammenfassung | 45 |

| 5.2. | Rh-103m-Generator | 45 |
|------|------------------------------------------------|----|
| | 1) Herstellung der Generatoren | 46 |
| | 2) Aufnahme der Elutionskurven | 49 |
| | 3) Durchführung der Melkoperationen | 49 |
| | 4) Diskussion der Ergebnisse | 50 |
| 5.3. | Kr-83m-Generator | 52 |
| | 1) Meßmethoden | 52 |
| | 2) Herstellung der Generatoren | 52 |
| | 3) Beschreibung der Versuche | 53 |
| | 4) Diskussion der Ergebnisse | 55 |
| 5.4. | Sr-87m-Generator | 55 |
| | 1) Beschreibung der Versuche | 55 |
| | 2) Diskussion der Ergebnisse | 57 |
| 5.5. | Fr-223-Generator | 57 |
| | 1) Beschreibung der Versuche | 58 |
| | 2) Diskussion der Ergebnisse | 60 |
| 5.6. | Versuche zur strahleninduzierten Fixierung von | |
| | auf PVC-Pulver | 60 |
| | 1) Beschreibung der Versuche | 60 |
| | 2) Zusammenfassung der Ergebnisse | 61 |
| LITE | ERATUR | 96 |



1. Einleitung

Radionuklide werden in der Medizin hauptsächlich für diagnostische Zwecke eingesetzt. Diese Entwicklung erfuhr in den letzten Jahren einen deutlichen Aufschwung. Für die Anwendung in der Diagnostik ist vor allem die chemische Zusammensetzung der markierten Verbindung von Bedeutung. Durch Modifizierung der chemischen Form kann ein bestimmtes Radionuklid für verschiedene Untersuchungen (Schilddrüsen-, Kreislauf-, Tumor-, Leber-, Nieren-, Gehirn-, Lungen-Diagnostik u. a.) eingesetzt werden. Da bei diagnostischen Untersuchungen Strahlenschäden im Gewebe vermieden werden sollen, ist der Einsatz von Radionukliden wünschenswert, die reine X - Strahler sind. Der optimale Energiebereich liegt zwischen 0,1 und 0,4 MeV. Diese Strahlung ist hart genug, um einen Einblick in tiefere Körperregionen zu ermöglichen, auch wenn dazwischenliegende Skeletteile zu verstärkter Absorption führen (z. B. bei Gehirnuntersuchungen). Andererseits kann Strahlung dieser Energie noch gut kollimiert werden, was für eine scharfe Lokalisierung des zu untersuchenden Schadens wesentlich ist. Um die Strahlenbelastung des Patienten weitgehend herabzusetzen, ist der Einsatz von Radionukliden kurzer Halbwertzeit von großem Interesse. Tabelle 1 zeigt einen Vergleich von 2 Strontiumisotopen verschiedener Halbwertzeit und verschiedener Zerfallsart in bezug auf die Strahlenbelastung der untersuchten Person. Man erkennt aus der Tabelle, daß das kurzlebige Sr-87m (reiner) - Strahler, Halbwertzeit 2,8 h) nur wenige Prozent der Strahlenbelastung verursacht, die man bei Applikation von Sr-85 (ß - und) - Strahler, Halbwertzeit 65 d) zu erwarten hat. Es können daher wesentlich größere Aktivitäten an Sr-87m für eine Untersuchung verwendet werden, was selbst bei einer Verkürzung der Meßzeit eine größere Genauigkeit der Diagnose gewährleistet.

Die therapeutische Anwendung von Radionukliden beschränkt sich auf äußerliche Bestrahlungen oder die Einführung aktiver Substanzen in Körperhöhlen. Dazu werden meist ß - Strahler verwendet (z. B. Y-90).

Zur Herstellung kurzlebiger Radionuklide für die klinische Praxis sind im Handel eine Reihe von Isotopengeneratoren erhältlich. In letzter Zeit werden sie in zunehmendem Maße in Ausführungen angeboten, mit deren Hilfe sterile, pyrogenfreie Lösungen der Nuklide erhalten werden. Die technische Ausführung gewährleistet meist eine einfache und sichere Handhabung.

Neben der Weiterentwicklung dieser handelsüblichen Isotopengeneratoren ist die Entwicklung neuer Melksysteme von besonderer Bedeutung. Es ist eine Reihe von Nuklidpaaren bekannt, die als Grundlage von Isotopengeneratoren sowohl medizinisch als auch technisch Bedeutung besitzen. Tabelle 2 gibt eine Übersicht über solche Radionuklide und ihre Kernzerfallsdaten.

Ziel der vorliegenden Untersuchungen war es, handelsübliche Melksysteme zu prüfen, bereits beschriebene Trennmethoden nachzuarbeiten und gegebenenfalls zu verbessern sowie neue Isotopengeneratoren zu entwickeln. Demzufolge ist Kapitel 2 dieser Übersicht der technischen Ausführung verschiedener, handelsüblicher Isotopengeneratoren gewidmet sowie der Diskussion der

medizinischen Anwendungsmöglichkeiten der betreffenden Radionuklide, Kapitel 3 - den Erfahrungen mit im Handel erhältlichen
Melksystemen, Kapitel 4 - der Überprüfung von Trennmethoden,
die in der Literatur beschrieben sind, und Kapitel 5 - der
Neuentwicklung von Isotopengeneratoren.

2. Handelsübliche Isotopengeneratoren und ihre medizinische Verwendung

Tabelle 3 gibt eine Übersicht über die Verwendungsmöglichkeiten und über die Vor- und Nachteile kurzlebiger Radionuklide, die in Form von Melksystemen im Handel verfügbar sind.

2.1. Sr-87m-Generator

1) Übersicht

Sr-87m kann zur Diagnose von Knochenmetastasen eingesetzt werden. Bei der Frühdiagnose von Metastasen ist die Sr-87m-Methode einer röntgenologischen Erfassung meist überlegen, sowohl hinsichtlich der Nachweisgrenze als auch der Genauigkeit. Die gesteigerte Sr-Einlagerung macht sich durch erhöhte Aktivität an den erkrankten Stellen bemerkbar (1 - 10). Außerdem lassen sich Fortschritte bei der Heilung verschiedenster Knochenerkrankungen serienmäßig beobachten und Knochenwachstumsraten bestimmen (11 - 15). Auch für die Lungen- und Leberszintigraphie und für Untersuchungen der Plazenta wurde Sr-87m erfolgreich verwendet (16, 17). Bei der Diagnose von Gehirntumoren können mit Hilfe von Sr-87m in Ergänzung zu

Untersuchungen mit Tc-99m zusätzliche Informationen erhalten werden (18).

Sr-87m ist das Tochternuklid von Y-87 und kann von diesem abgetrennt werden. Y-87 kann entweder als Carbonatokomplex oder als Citratokomplex auf einem Anionenaustauscher fixiert werden. Im ersten Fall wird als Elutionsmittel 0,15 m Natriumhydrogencarbonat-Lösung verwendet (Typ I). Diese Methode liefert Sr-87m mit einem Dekontaminationsfaktor von 10⁶ - 10⁷. Die zweite Methode gestattet die Elution von Sr-87m mit Hilfe einer Lösung, die 50 mg/l Zitronensäure enthält und mit Ammoniak auf pH 5 eingestellt ist (Typ II). Der Dekontaminationsfaktor dieser Trennmethode beträgt etwa 10^5 . Die Verunreinigung des Eluates mit Y-88 und Sr-85 ist in beiden Fällen gering (weniger als 10^{-3} %). Beide Methoden wurden zur Herstellung von Generatoren verwendet. Im Handel gibt es daher zwei Typen von Generatoren. Tab. 4 gibt eine Übersicht über die handelsüblichen Melksysteme für Sr-87m.

- 2) Besprechung der einzelnen Melksysteme
 - a) Typ I: Die Fa. NEN liefert einen Generator auf der Basis der Carbonatokomplexe. Das Melksystem besteht aus einer Glassäule, die den Anionenaustauscher enthält. Die Säule ist durch eine Plexiglasumhüllung geschützt. Auf Wunsch wird die Säule mit einem Luer-Ansatz geliefert, der die Adaptierung eines Milliporfilters erlaubt. In diesem Fall muß

mit Hilfe von Unterdruck das Eluat aus der Säule gesaugt werden. Das Milliporfilter gestattet die Gewinnung eines sterilen Eluates. Die Fa. NEN liefert Generatoren, die mit maximal 10 mCi Y-87 beladen sind.

b) Typ II: Die Firmen Buchler & Co., Braunschweig (Vertrieb für Radiochemical Center, Amersham, England) und Zoan-Chemie GmbH (Vertrieb für Philips-Duphar, Petten/Holland) liefern Generatoren, deren Grundlage in der Fixierung von Y-87 als Citratokomplex auf einen Anionenaustauscher besteht. Die mit einem Luer-Verschluß versehene Austauschersäule der Firma Buchler kann durch Ansatz eines Milliporfilters zur Gewinnung steriler Eluate herangezogen werden. Sterile Elutionslösung wird mitgeliefert.

Das Melksystem der Fa. Zoan-Chemie GmbH wird als geschlossene Anordnung in steriler Ausführung geliefert. Die sterile Elutionslösung und das Zubehör für 6 Melkoperationen sind in der Standardausführung enthalten. Bei laufender Bestellung wird die Abschirmung dem Benutzer zur Verfügung gestellt, so daß immer nur die Austauschersäule mit ihrem Zubehör ausgewechselt werden muß. Da die als Verbindungsstücke verwendeten Injektionsnadeln stets gegen ebenfalls mitgelieferte, steril gehaltene Nadeln ausgewechselt werden, ist die Sterilität an der Anordnung über die Betriebsdauer weitestgehend garantiert. Die Handhabung des Melksystems ist einfach.

2.2. In-113m-Generator

1) Übersicht

In-113m kann in einfacher Weise zu Verbindungen umgesetzt werden, die in verschiedener Weise für die medizinische Diagnostik verwendet werden können. Durch Markierung von patienteneigenem Plasma oder von handelsüblichem Transferrin (19 - 23) werden Präparate erhalten, die sich zur Bestimmung des Blutvolumens (19, 20), zur Radiokardiographie (20 - 22, 33, 32) zur Placenta-Szintigraphie (23) und zur Myeloszintigraphie (23) eignen. Durch Absorption von In-113m auf Eisenhydroxidpartikeln ergeben sich Präparate, die für die Lungenszintigraphie geeignet sind (24 - 27). Zur Leberszintigraphie finden In-113m-Kolloide Verwendung (28 -31). In-113m-Chelate werden zur Hirnszintigraphie (32) und für Nierenfunktionsuntersuchungen (34, 35) eingesetzt. In der Hirnszintigraphie scheinen Tc-99m und Hg-197 dem In-113m jedoch überlegen zu sein (36 - 38). Die γ - Energie von In-113m ist für szintigraphische Untersuchungen optimal, die lange Halbwertzeit des

Untersuchungen optimal, die lange Halbwertzeit des Mutternuklids erlaubt eine lange Benutzung des Generators. Zusammen mit den bereits besprochenen medizinischen Anwendungsmöglichkeiten machen diese Eigenschaften In-113m zu einem für diagnostische Zwecke vielfältig geeigneten Radionuklid.

Zur Gewinnung von In-113m in Form eines Isotopengenerators wird das Mutternuklid Sn-113 auf Zirkondioxid ad-

sorbiert. Die Elution des Tochternuklids kann mit verdünnter Salzsäure (am besten 0,04 - 0,08 n HCl) erfolgen. Alle handelsüblichen Generatoren beruhen auf diesem Prinzip. Der mit dieser Methode erzielte Dekontaminationsfaktor liegt über 10⁴. Im Handel gibt es 4 Melksysteme für In-113m. Tab. 5 gibt eine Übersicht über diese Generatoren.

2) Besprechung der einzelnen Melksysteme Entsprechend der gleichen chemischen Grundlage unterscheiden sich die einzelnen handelsüblichen Generatoren für In-113m nur in der technischen Ausführung. Da Sn-113 durch (n, χ) - Reaktion aus Sn-112 hergestellt wird, ist der spezifischen Aktivität des Mutternuklids eine Grenze gesetzt. Durch Verwendung von angereichertem Sn-112 bei der Bestrahlung kann die spezifische Aktivität erhöht werden, was für die Größe der verwendeten Austauschersäulen von Interesse ist. Bei Verwendung von Sn-113 höherer spezifischer Aktivität kann das Elutionsvolumen kleiner gehalten werden. Dementsprechend bietet die Fa. NEN zwei Typen von Generatoren an, die sich im erforderlichen Elutionsvolumen unterscheiden. Die Elution des Generators erfolgt mit Hilfe evakuierter Röhrchen, die in die passenden Öffnungen eingesetzt werden. Zuerst wird mit Hilfe eines Röhrchens eine Fraktion niedriger Aktivität eluiert (Leervolumen der Apparatur). Die Hauptaktivität wird anschließend gesondert abgemolken, wobei die Lösung zur endgültigen Sterilisierung durch das Milliporfilter gesaugt wird. Das Melksystem enthält einen Vorrat an steriler Vorratslösung. Eine Bleiabschirmung sorgt für möglichst geringe Strahlenbelastung während der Handhabung. Die Melkoperation ist einfach durchzuführen.

Das Melksystem der Fa. Philips-Duphar entspricht in seiner Ausführung dem Sr-87m-Generator.

Das Melksystem der Fa. Buchler (Radiochemical Center, Amersham) besteht aus einer Ionenaustauschersäule mit Abschirmung ohne weitere Zusätze.

2.3. Ga-68-Generator

1) Übersicht

Ga-68 ist als ß⁺ - Strahler von Interesse. Mit Hilfe eines Positronium-Scanners (einer Anordnung von 2 Zählrohren in Koinzidenzschaltung, zwischen welche der zu untersuchende Patient gebracht wird) ist eine genauere Lokalisierung der Aktivität im Körper möglich. Ein Nachteil dieser Methode liegt jedoch einerseits im hohen Preis einer solchen Meßanordnung, andererseits im relativ hohen Preis des verwendeten Radionuklids. Ga-68 wird zur Gehirnszintigraphie, für Knochenuntersuchungen und zur Darstellung des Blutpools verwendet; es wird jedoch von In-113m und Tc-99m in zunehmendem Maße verdrängt.

Die Trennung von Mutter- und Tochternuklid gelingt durch Sorption des Mutternuklids auf Aluminiumoxid. Ga-68 kann mit 0,005 m EDTA-Lösung (pH 7) eluiert werden. Der mit dieser Methode erzielte Dekontaminationsfaktor ist größer als 10⁴.

- 2 Ga-68-Generatoren sind im Handel erhältlich. Tab. 6 gibt eine Übersicht über die Eigenschaften der Generatoren.
- 2) Besprechung der einzelnen Generatoren

 Das Melksystem der Fa. NEN besteht aus einer Ionenaustauschersäule mit Luer-Ansatz. Durch Adaption eines

 Millipor-Filters ist die Sterilisierung des Eluates

 möglich. Auch die technische Ausführung des Generators

 der Fa. Buchler ist einfach.

2.4. Tc-99m-Generator

1) Übersicht

Tc-99m wird in verschiedenen chemischen Formen in der Medizin verwendet. Als Pertechnetat, wie es bei der Elution der Generatoren erhalten wird, wird das Nuklid für die Hirnszintigraphie verwendet. Dabei dient es vor allem der Lokalisierung von Tumoren (39 - 47). Außerdem dienen Pertechnetat-Lösungen zur Schilddrüsenszintigraphie. Gegenüber J-125 und J-131 besticht die rasche Durchführbarkeit der Untersuchungen (innerhalb weniger Minuten) und die geringe Strahlenbelastung (48 - 50). Dieselben Vorteile bietet Tc-99m bei der

Darstellung des Blutpools des Herzens und der umgebenden Gefäße (51). Ein Eisen-Ascorbinsäure-Komplex (53) kann zur Nierenszintigraphie (52) verwendet werden, ein Schwefelkolloid (54 - 56) oder Antimonsulfid-Kolloid (57) zur Szintigraphie von Leber, Milz und Knochenmark (58, 59). Durch Markierung von Albumin mit dem Radionuklid (60 - 64) werden Präparate erhalten, die die Lungenszintigraphie (60) und die Placentographie (61, 65, 66) ermöglichen.

Tc-99m ist das Tochternuklid von Mo-99. Der Vorteil des Tc-99m liegt in der reinen X - Strahlung und der kurzen Halbwertzeit. Der Nachteil ist die kurze Halbwertzeit des Mutternuklids, welche die Benutzungszeit des Generators auf 1 - 2 Wochen beschränkt. Zur Abtrennung kann Mo-99 als Molybdat auf Aluminiumoxid fixiert werden, wobei Tc-99m mit physiologischer Kochsalzlösung eluiert werden kann. Diese Trennmethode ist Grundlage für alle handelsüblichen Tc-99m-Generatoren. Der Dekontaminationsfaktor ist größer als 10⁴.

Im Handel sind 5 Generatoren für Tc-99m erhältlich. Tab. 7 gibt eine Übersicht über die handelsüblichen Melksysteme.

2) Besprechung der einzelnen Melksysteme

Das Melksystem der Fa. Buchler besteht aus einer

Ionenaustauschersäule mit Luer-Ansatz, welche die

Adaptierung des Millipor-Filters zurendgültigen

Sterilisierung erlaubt.

Die Fa. CEA-CEN-SORIN liefert ein sterilisiertes Melksystem in geschlossener Ausführung. Die Elution des
Generators erfolgt durch Verwendung evakuierter Gefäße, mit deren Hilfe die Elutionslösung aus einem
Vorratsgefäß in den Generator gesaugt wird.

Die technische Ausführung des Generators der Fa. Philips-Duphar entspricht der des Sr-87m-Generators. Ein Unterschied gegenüber dieser Ausführung besteht nur in der Verwendung evakuierter Fläschchen bei der Elution.

Die Fa. Hoechst liefert ein Melksystem, das ebenfalls aus einer geschlossenen Anordnung besteht und steril und pyrogenfrei ist. Die Elution des Generators erfolgt durch Einspritzen der Elutionslösung mit Hilfe einer Injektionsnadel in den Kopf der Säule.

Die Ausführung des Generators der Fa. NEN entspricht der bei In-113m beschriebenen Anordnung.

Im allgemeinen wird bei den erhältlichen Tc-99mGeneratoren besonderer Wert auf Sterilität und Pyrogenfreiheit der Elutionslösung gelegt und von den Firmen
auch garantiert. Da in der Medizin vielfach komplexe

Lösungen des Radionuklids verwendet werden, liefern eine Reihe von Firmen die für solche Umsetzungen nötigen Lösungen als komplette Sätze (z. B. CEA-CEN-SORIN).

1.5. Re-188-Generator

1) Übersicht

Re-188 kann ähnlich wie Tc-99m für die Leber-, Lungen-, Gehirn- und Schilddrüsenszintigraphie verwendet werden. Ein Nachteil des Nuklids liegt in der hochenergetischen ß - Strahlung (maximale Energie 2 MeV), die eine zusätzliche Strahlenbelastung hervorruft. Andererseits wurde auch an die therapeutische Verwendung von Re-188 als Ersatz für P-32 gedacht. Ein Vorteil des Systems liegt in der relativ großen Halbwertzeit des Mutternuklids W-188. Die dadurch bedingte lange Benutzungsmöglichkeit des Generators macht seinen relativ hohen Preis wieder wett.

Re-188 entsteht durch den radioaktiven Zerfall aus W-188. Zur Trennung kann W-188 auf Aluminiumoxid fest absorbiert werden. Die Elution von Re-188 erfolgt mit Kochsalzlösung. Diese Trennmethode liefert 50 % Ausbeute und einen Dekontaminationsfaktor von 10⁵. Im Handel befindet sich nur ein Melksystem dieses Typs (Fa. NEN).

2) Besprechung der Melksysteme

Die Standardausführung des Re-188-Generators der Fa.
NEN hat eine Aktivität bis zu 10 mCi. Für höhere Be-

ladungen sind auf Anfrage Generatoren erhältlich.

Die Säule trägt einen Luer-Ansatz, der die Adaption eines Milliporfilters zur Sterilisierung des Eluates erlaubt.

2.6. J-132-Generator

1) Übersicht

J-132 wird für Schilddrüsen-Untersuchungen verwendet sowie zur Bestimmung des Plasmavolumens für Blutkreis-laufuntersuchungen und zur Szintigraphie der Placenta (67, 68).

Das Nuklid ist das Tochternuklid des Te-132, das aus Spaltproduktlösungen abgetrennt werden kann (zusammen mit Te-131 als Verunreinigung). Te-132 und Te-131 können als Tellurit auf Aluminiumoxid adsorbiert werden. Die Elution von J-132 und J-131 erfolgt mit 0,01 m Ammoniaklösung. Die Elutionslösung wird mit etwas Thiosulfat versetzt, um die Reduktion von J-132 zu Jodid zu gewährleisten. Dadurch verbessert sich einerseits die Ausbeute, andererseits ist die chemische Form des Nuklids gut definiert. Die erhaltene Elutionslösung enthält neben J-132 vor allen Dingen J-131. Die Kontamination mit Tellurisotopen ist gering. J-132-Generatoren können vom Radiochemical Centre, Amersham, über die Fa. Buchler sowie vom Brookhaven-National-Laboratory und von der Fa. CEA-CEN-SORIN bezogen werden.

2) Besprechung der einzelnen Melksysteme
Alle J-132-Generatoren stellen einfache Ionenaustauscher-

säulen dar. Über das Melksystem der Fa. CEA liegen zur Zeit keine genauen Einzelheiten vor.

3. Prüfung handelsüblicher Isotopengeneratoren

Eine Reihe von handelsüblichen Melksystemen wurde einer systematischen Prüfung unterzogen. Dabei wurde besonderer Wert auf die Bestimmungen der Reinheit des eluierten Nuklids als auch auf die Bestimmung der Ausbeuten gelegt. Die Reinheit des Tochternuklids wird im folgenden in Form des Dekontaminationsfaktors angegeben. Dieser stellt das Verhältnis der Aktivität des Tochternuklids zur Aktivität des Mutternuklids im Eluat unmittelbar nach der Melkoperation dar. Die Analyse des Eluates wurde an Hand von Messungen des Aktivitätsabfalls der Nuklide durchgeführt. Die relativen Zählausbeuten wurden berücksichtigt. Die Ausbeuteangaben wurden stets auf die von den Herstellern veröffentlichten Daten bezogen.

3.1. J-132-Generator der Firma Buchler

1) Beschreibung der Versuche

Der Generator war mit 10 mCi Te-132 beladen. Er wurde über längere Zeit systematisch untersucht. Dazu wurde im allgemeinen zweimal am Tag abgemolken; hin und wieder wurde jedoch eine größere Unterbrechung im Zyklus der Melkoperationen zugelassen, um das Verhalten des Isotopengenerators nach mehrtägiger Ruhe zu studieren.

Die Tochternuklide J-131 und J-132 können leicht an Hand der Halbwertzeiten voneinander unterschieden werden. Die als Verunreinigung im Eluat auftretenden Tellur-Isotope sind etwas schwieriger nachzuweisen, da Te-132 eine kürzere Halbwertzeit als J-131 hat. Der Nachweis des Te-132 wurde einerseits über seine Halbwertzeit, andererseits X -spektrometrisch geführt.

Tabelle 8 gibt eine Übersicht über die ausgeführten Melkoperationen, die gemessenen Impulsraten und die Ausbeuten sowie Dekontaminationsfaktoren.

2) Diskussion der Ergebnisse

Die Ausbeute des Generators entsprach dem vom Hersteller angegebenen Wert. Der Aktivitätsabfall der eluierten Proben zeigte nur die Halbwertzeiten von J-132 und J-131. Te-132 und Te-131 konnten weder an Hand des Aktivitätsabfalles noch auf Grund der J-Spektren nachgewiesen werden. Da die Halbwertzeiten dieser beiden Nuklide kleiner sind als die von J-131, stören geringe Mengen davon bei der Verwendung nicht. Das Eluat war frei von anderen Tellurisotopen.

Erwartungsgemäß war der Gehalt des Eluats an J-131 bei den ersten Melkoperationen am größten und deutlich abhängig von dem Zeitintervall zwischen den einzelnen Melkoperationen.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß der Generator in seiner Wirkungsweise den Angaben des Herstellers entspricht, sowohl was die Betriebssicherheit als auch die Reinheit der Nuklide betrifft.

3.2. Sr-87m-Generator der Firma Buchler

1) Beschreibung der Versuche

Die Firma schickte eine Tabelle mit, aus der die zu erwartenden Ausbeuten an Sr-87m für verschiedene Zeitpunkte abgelesen werden konnten. Die Tabelle endete nach etwa 2 Wochen. Die Melkoperationen wurden jedoch über diesen Zeitpunkt hinaus weiter durchgeführt, um zu untersuchen, ob die Leistungsfähigkeit auch bei längerer Benützung bestehen blieb. Als Elutionsmittel diente 0,05 % Ammoniumcitratlösung vom pH 5. Für die ersten Melkoperationen wurden die mitgesandten Portionen an Elutionsmittel verwendet. Für die weiteren Versuche wurde das Elutionsmittel unter Verwendung von abgekochtem Wasser selbst hergestellt. Die Lösung wurde öfter erneuert. Bei allen Melkoperationen erfolgte die Elution ohne Anwendung von Überdruck.

Die abgemolkenen Proben wurden nach entsprechendem Verdünnen in einem Bohrloch-Szintillationszähler gemessen.

Die Zerfallskurve des Sr-87m wurde aufgenommen. Aus der Restaktivität wurde das eluierte Y-87 bestimmt. Während der ersten 14 Tage wurden pro Tag 3 Melkoperationen durchgeführt. Insgesamt wurde der Generator 68 mal abgemolken.

2) Diskussion der Ergebnisse

Die Meßergebnisse sind in Tabelle 9 zusammengefaßt. Die eluierten Proben wurden an Hand des Aktivitätsabfalls

analysiert. Eine typische Zerfallskurve ist in Abb. 1 dargestellt. Man erkennt das rasche Abfallen der Sr-87m-Aktivität zu Beginn der Messungen (Halbwertzeit 2,8 h) und als zweiten Schritt den langsameren Abfall der Y-87-Aktivität (Halbwertzeit 80 h). Außerdem wurde eine Restaktivität von weniger als 10⁻⁵ % nachgewiesen, die eine längere Halbwertzeit aufwies. Eine y - spektrometrische Analyse des Eluates ergab Y-88, was auch mit den Angaben des Herstellers übereinstimmt.

Die bei den Melkoperationen eluierte Aktivität an Y-88 ist in Tab. 9 eingetragen. Außerdem ist die daraus errechnete Kontamination der Lösung mit Y-88 in Prozent der Aktivität des Tochternuklids (zum Zeitpunkt der Trennung) angegeben.

Aus Tabelle 9 ist ersichtlich, daß der Dekontaminationsfaktor zu Beginn der Versuche höher als 10⁶ war und langsam abfiel. Er blieb jedoch während der ersten 14 Melkoperationen deutlich über 10⁶. Bei den nächsten 14 Melkoperationen wurden Dekontaminationsfaktoren gemessen, welche über 10⁵ lagen. Bei den darauffolgenden Melkoperationen konnte nur ein Näherungswert des Dekontaminationsfaktors angegeben werden, der unter der Voraussetzung berechnet wurde, daß sich Y-87 bei der Elution ebenso verhält wie Y-88. Der Fehler bei der Messung der geringen Impulsraten des Y-87 machte eine direkte Angabe unmöglich. Nach diesen Berechnungen lag der Dekontaminationsfaktor bei allen Melkoperationen über 10⁵.

Die Aktivität an Y-88 lag zwischen 10 und mehreren hundert Impulsen pro Minute. Sie schwankte ziemlich stark.

Das Verhältnis Y-87/Y-88 fiel entsprechend dem Verhältnis der Halbwertzeiten der beiden Nuklide langsam ab.

Es betrug zu Beginn der Versuche etwa 10. Abb. 2 zeigt die Abhängigkeit dieses Verhältnisses von dem Alter des Generators. Wegen der geringen Aktivität ist die Fehlerbreite verhältnismäßig groß. Die Ausbeute lag bei allen Melkoperationen zwischen 80 und 100 %. Außerdem wurde die Zeit gemessen, die zur Ausführung einer Melkoperationen zwischen 10 und 15 Minuten. Erst nachher machten sich große Schwankungen bemerkbar, wobei bis um den Faktor 16 längere Trennzeiten gemessen wurden.

- 3.3. Sr-87m-Generator der Firma Philips-Duphar

 Das von der Firma Philips-Duphar bezogene Melksystem

 stellte eine sterile, geschlossene Anordnung dar. Es

 war mit 10 mCi Y-87 beladen. Als Elutionsmittel diente

 0,05 %-ige Ammoniumcitratlösung pH 5.
 - 1) Beschreibung der Versuche

Die Elutionsgeschwindigkeit wurde mit Hilfe eines Quetschhahnes zwischen 0,5 und 10 ml/min variiert, um ihren Einfluß auf die Reinheit des Sr-87m zu untersuchen. Das Melksystem wurde einem Zyklus von insgesamt 55 Melkoperationen in 18 Tagen unterworfen, was etwa 3 Melkoperationen pro Tag entspricht, bis zum Aktivitätsabfall der Mutter

auf etwa 2 %. Die abgemolkenen Proben wurden an Hand der Zerfallskurve analysiert. Dabei wurden Sr-87m, Y-87 und Y-88 nebeneinander nachgewiesen. Tabelle 10 gibt eine Übersicht über die Meßergebnisse. Eine Bestimmung der relativen Zählausbeuten war wegen der gleichzeitigen Anwesenheit von Y-88 mit zu großen Ungenauigkeiten behaftet und wurde nicht durchgeführt.

Außerdem wurde die Aktivitätsverteilung im Eluat in Abhängigkeit vom Alter des Generators untersucht und die Abhängigkeit des Dekontaminationsfaktors von der Nummer der Fraktion gemessen. Die Meßergebnisse sind in Tabelle 11 zusammengestellt. Die erste Spalte der Tabelle gibt die Nummer der betrachteten Melkoperation an, die zweite Spalte die Nummer der Fraktion, die dritte Spalte die Aktivitätsverteilung des Sr-87m (in Prozent der bei dieser Melkoperation insgesamt eluierten Aktivität) und die vierte Spalte den in der betrachteten Fraktion gemessenen Dekontaminationsfaktor.

2) Diskussion der Ergebnisse

Die Ausbeute in den Elutionen stimmt mit den Angaben der Hersteller überein.

Aus Tabelle 10 ist eine deutliche Abhängigkeit des Dekontaminationsfaktors vom Alter des Generators ersichtlich bzw. von der Zahl der durchgeführten Melkoperationen. Der Dekontaminationsfaktor fiel im Laufe des Betriebes der Säule von über 10^5 auf etwas unter 10^3 ab.

Bis zu etwa 45 Melkoperationen lag der Dekontaminationsfaktor deutlich über 10⁴. Im Hinblick auf die relativ
kurze Halbwertzeit der Mutteraktivität scheint dieser
Wert zufriedenstellend. Außer Y-87 ist im Eluat auch
Y-88 mit einer Halbwertzeit von 108 d vorhanden. Zu
Beginn der Versuche betrug das Verhältnis zwischen
Y-87 und Y-88 etwa 20 und fiel mit steigendem Alter
des Generators entsprechend dem Verhältnis des Halbwertzeiten der beiden Nuklide langsam ab.

Tabelle 11 gibt eine Übersicht über das Elutionsverhalten des Generators in Abhängigkeit von seinem Alter.

Man erkennt ein deutliches Verflachen der Elutionskurve mit steigender Zahl der Melkoperationen, während sich bei der dritten Melkoperation 95 % der Sr-87m-Aktivität in den ersten 10 ml befanden, waren es bei der 40. Melkoperation 85 % und bei der 52. Melkoperation 81 %. Der Dekontaminationsfaktor zeigte keine deutliche Abhängigkeit vom Elutionsvolumen einer Melkoperation.

3.4. Tc-99m-Generator der Fa. Buchler

Über die Fa. Buchler wurde vom Radiochemical Centre, Amersham, England, ein Tc-99m-Generator bezogen, der mit 15 mCi Mo-99 beladen war. Als Elutionslösung diente physiologische Kochsalzlösung.

1) Beschreibung der Versuche

Die Elution des Generators wurde ohne Druck ausgeführt. Unter diesen Bedingungen dauerte eine Elution mit 10 ml Lösung etwa 10 - 15 min. In einigen Fällen wurde durch Anwendung eines hydrostatischen Überdruckes eine raschere Durchflußgeschwindigkeit eingestellt und der Einfluß dieses Faktors auf die Reinheit der eluierten Lösung untersucht.

Zur Analyse der radiochemischen Reinheit des Eluates diente die Messung des Aktivitätsabfalles im Eluat. Die dabei ermittelte Restaktivität entsprach hinsichtlich der Halbwertzeit nicht dem Mo-99. Es wird deshalb angenommen, daß es sich um eine andere Verunreinigung handelte. Sie konnte jedoch nicht exakt zugeordnet werden.

2) Diskussion der Ergebnisse

Die Ausbeute des untersuchten Generators stimmte mit den Angaben der Hersteller überein. Der Dekontaminationsfaktor lag bei den ersten 32 Melkoperationen stets zwischen 10⁶ und 10⁷ und entsprach den Erwartungen. Bei den Melkoperationen Nr. 60 - 94 war die Restaktivität für eine genaue Bestimmung des Dekontaminationsfaktors zu gering. Die angegebenen Werte stellen untere Grenzwerte für den Dekontaminationsfaktor dar.

Unter gleichen Elutionsbedingungen sank die Durchflußgeschwindigkeit nach einer längeren Betriebspause von
12 Tagen (Alter des Generators : 30 Tage) von 0,8 ml/min
auf etwa 0,4 ml/min ab. Nach insgesamt 41 Tagen Betriebsdauer betrug sie 0,3 ml/min. Unter Anwendung eines entsprechenden Überdruckes wurde die Durchflußgeschwindigkeit für einige Melkoperationen bis zu 2,0 ml/min erhöht.

Diese Maßnahme war ohne Einfluß auf die Reinheit des Tochternuklids und die Ausbeute.

- Von der Firma Philips-Duphar, Petten, Holland, wurde ein Generator für Tc-99m bezogen. Der Generator wurde als komplettes Melksystem in steriler Ausführung geliefert.

 Die zur Elution nötigen Handgriffe waren schnell und einfach durchzuführen. Die Herstellerfirma garantierte für den Lieferzeitpunkt einen Tc-99m-Gehalt der Säule von 25 mCi. Der Generator wurde einem Zyklus von insgesamt 180 Melkoperationen innerhalb von 18 Tagen unterworfen.

 In der Praxis liegt die Belastung des Melksystems wesentlich niedriger.
 - 1) Beschreibung der Versuche:

Die Elutionsgeschwindigkeit des Generators wurde unter Verwendung eines Quetschhahnes in weiten Grenzen variiert. Sie lag zwischen 27 und 2 ml pro Minute. Unter diesen Bedingungen dauerte eine Elution zwischen 0,5 und 7 Minuten. An Hand dieser Versuche wurde ein überblick über die Betriebssicherheit des Melksystems erzielt.

Zur Bestimmung der radiochemischen Reinheit diente die Messung des Aktivitätsabfalls im Eluat. Als Dekontaminationsfaktor wurde das Verhältnis der Impulsraten von Tc-99m und der Restimpulsrate im Eluat berechnet.

Tabelle 13 gibt eine Übersicht über die durchgeführten Melk-

operationen. Bei mehreren Elutionen wurde die Elutionslösung fraktioniert, um einen Überblick über die Aktivitätsverteilung im Eluat zu erhalten. Dabei wurde besonderer Wert auf die Bestimmung der Form der Elutionskurve gelegt sowie auf die Bestimmung der Abhängigkeit des Dekontaminationsfaktors vom Elutionsvolumen. Tabelle 14 gibt eine Übersicht über die erhaltenen Meßergebnisse. Die erste Spalte der Tabelle 14 gibt die Nummer der betrachteten Melkoperationen an, wobei sich diese Angabe auf die Nummer in Tabelle 13 bezieht. In der zweiten Spalte ist die Nummer der Fraktion dieser betreffenden Melkoperation eingetragen. Jede Fraktion enthielt 5 ml. Die dritte Spalte enthält Angaben über die Form der Elutionskurve, wobei die Tc-99m-Aktivität pro Fraktion in Prozent der insgesamt bei dieser Melkoperation eluierten Aktivität angegeben ist. Die vierte Spalte schließlich beschreibt die Abhängigkeit des Dekontaminationsfaktors von der Nummer der Fraktion.

Um die Reproduzierarbeit des Elutionsverhaltens des Systems zu überprüfen, wurden die Volumina der automatisch abgesaugten Eluate genau bestimmt.

2) Diskussion der Ergebnisse:

Die Ausbeute des untersuchten Generators entsprach den Angaben des Herstellers.

Der Dekontaminationsfaktor der Melkoperationen lag stets über 10^4 , in den meisten Fällen jedoch über 10^5 . Eine Ab-

hängigkeit der radiochemischen Reinheit des Tc-99m von der Elutionsgeschwindigkeit konnte nicht festgestellt werden. Das Melksystem zeigte während der Untersuchungszeit konstante Ergebnisse.

An Hand der Übersicht über die fraktionierten Elutionen (Tabelle 14) ist ersichtlich, daß die zweite Fraktion stets den Hauptteil der Aktivität enthielt. Die Elutionskurve zeigte einen scharfen Verlauf und war praktisch unabhängig von der Nummer der betrachteten Melkoperation, was die Konstanz des Elutionsverhaltens des Generators unterstreicht. Der Dekontaminationsfaktor war deutlich von der Fraktion abhängig und verlief analog der Aktivitätsverteilung der Fraktionen. Daraus kann geschlossen werden, daß die langlebige Aktivität gleichmäßig in geringem Maß aus der Säule eluiert wird.

Die Überprüfung der Elutionsvolumina bei automatischem Absaugen ergab, daß die vorgeschriebenen 15 ml mit einem Fehler von etwa ± 6 % eingehalten wurden.

Eine genauere Prüfung der Restaktivität im Eluat ergab eine etwas längere Halbwertzeit als dem Mo-99 entsprach. Die gemessene Restaktivität kann daher nicht nur Mo-99 zugeschrieben werden. Nach Abklingen der Mo-99-Aktivität wurde ein X - Spektrum der noch in der Säule verbliebenen Aktivität aufgenommen. Abb. 3 gibt einen Überblick über das Meßergebnis. Die einzelnen X - Linien konnten nicht eindeutig zugeordnet werden, so daß über die Art der Ver-

unreinigung Unklarheit besteht. Die gefundene langlebige Aktivität tritt im Eluat des Generators zu etwa 10^{-3} % auf.

4. Prüfung einiger in der Literatur beschriebener Melksysteme

4.1. Y-90-Generator nach Doering, Tucker und Stang Der Generator ist in verschiedenen Veröffentlichungen genau beschrieben (69 - 75). Er wurde nach den Angaben der Autoren (69) hergestellt und mit 1 mCi Sr-90 beladen. 1) Durchführung der Melkoperationen und Meßergebnisse Tabelle 15 enthält eine Übersicht über die Untersuchungen und ihre Resultate. Die erste Spalte der Tabelle gibt die Betriebsdauer des Generators, die zweite Spalte die Zeit an, die nach der vorausgehenden Melkoperation verstrichen war. Die Angabe erfolgt in Einheiten der Halbwertzeit $t_{1/2}$ des Y-90 ($t/t_{1/2}$). Die Ausbeute (Spalte 5) wurde auf die tatsächlich in der Säule vorhandene Menge an Y-90 bezogen. Die Dekontaminationsfaktoren wurden nach 2 Methoden bestimmt: Nach einer von Doering u. Mitarbeitern (69) angegebenen Methode, die auf einer Abtrennung des bei der Messung störenden Y-90 beruht, und auf Grund von low-level-Messungen nach dem Abklingen des Y-90. Die Ergebnisse der beiden Methoden stimmten überein. Wegen der größeren Genauigkeit bei der zweiten Methode (low-level-Messung) wurden nur diese Werte in die Tabelle aufgenommen. Die Meßergebnisse sind in Spalte 6 und Spalte 7 der Tabelle 15 zusammengefaßt.

2) Elutionsverhalten des Generators

Um das Elutionsverhalten der Säule zu untersuchen, wurde die Aktivitätsverteilung des Y-90 im Eluat zu Beginn der Versuchsreihe und nach einem Durchsatz von 32 l Citrat-lösung gemessen. Abb. 4 gibt einen Vergleich verschiedener Elutionskurven. Bei Versuch 1 war der Generator etwa 6 Tage alt; bei Versuch 19 war er etwa 70 Tage alt und mit einer Lösungsmittelmenge von etwa 32 l eluiert worden; bei Versuch 22 hatte der Generator ein Alter von 270 Tagen und war mit 33 l Citratlösung behandelt worden. Auf Grund der Aktivitätsverteilung bei Versuch 1 wurde das günstigste Elutionsvolumen zu 150 ml festgelegt.

Man erkennt aus den Elutionskurven bei den Versuchen 1 und 19, daß sich das Elutionsverhalten nach Durchsatz von 32 1 Elutionslösung merklich geändert hatte. Das Elutionsmaximum war kleiner und es zeigte sich eine ausgeprägte Schwanzbildung. Die Ausbeute blieb jedoch in der gleichen Größenordnung. Der pH-Wert der eluierten Lösung wurde häufig kontrolliert und bewegte sich stets zwischen 5,40 und 5,60. Die Elutionslösungen wurden laufend neu angesetzt. Nach der Elution mit 32 1 Citratlösung wurde außerdem die Aktivitätsverteilung des Sr-90 auf der Säule mit einem Geiger-Müller-Zählrohr mit Bleiblende gemessen. Das Ergebnis ist in Abb. 5 wiedergegeben. Man erkennt, daß die Hauptmenge des Sr-90

während der Elution mit 32 1 Lösung erheblich gewandert war (etwa 7 cm).

3) Zusammenfassung

Der Y-90-Generator nach Doering, Tucker und Stang wurde entsprechend den Angaben der Autoren untersucht. Die Dekontaminationsfaktoren konnten gut reproduziert werden; die Angaben bezüglich der Ausbeuten wurden jedoch nicht bestätigt. Während die Autoren Ausbeuten von 95-98 % angaben, wurden bei der Überprüfung nur einige Prozente des Y-90 gefunden. Die Ursache dafür konnte nicht geklärt werden.

Eine Schwierigkeit stellte die Anfälligkeit der Citratlösung gegen pH-Änderungen dar. Bei der Lagerung des Generators veränderte sich der pH-Wert in der Austauschersäule.
Gleichzeitig verringerten sich die Ausbeuten und der Dekontaminationsfaktor. Es ist daher empfehlenswert, durch öfteres
Eluieren auch während der Lagerung auf pH-Stabilität in der
Säule zu achten.

4.2. Ba-137m-Generator nach Blau, Zielinsky und Bender
Blau, Zielinsky und Bender beschrieben einen Generator zur
Gewinnung von Ba-137m. Er enthielt Ammoniummolybdatophosphat (AMP) auf Asbest. Der Generator wurde nach den
Angaben der Autoren hergestellt mit dem Unterschied, daß
die Zerkleinerung des Asbests nicht in einem Mixer, sondern
in einer Reibschale vorgenommen wurde. Die Elution erfolgte
jeweils mit 2 ml Lösung. Eine Erhöhung der Lösungsmittel-

menge brachte keinen Vorteil.

1) Meßergebnisse

Tabelle 16 gibt eine Übersicht über die Untersuchungen und ihre Resultate. Die in Spalte 2 aufgeführten Impulsraten sind korrigierte und auf den Zeitpunkt der Trennung extrapolierte Werte.

Nach dem vollständigen Abklingen des Ba-137m (nach mehreren Stunden) wurde die Restaktivität bestimmt. Diese Impulsrate entspricht der eluierten Cs-Aktivität. Sie ist in Spalte 5 angegeben und diente zur Berechnung des Dekontaminationsfaktors (Spalte 6).

2) Zusammenfassung der Ergebnisse

Das Melksystem für Ba-137m lieferte in der ersten Betriebszeit (ca. 10 Tage lang) Dekontaminationsfaktoren zwischen 10⁵ und 10⁶. Mit steigender Betriebsdauer fiel der Dekontaminationsfaktor laufend ab und erreichte unter den Versuchsbedingungen nach etwa 23 Tagen einen Wert von 10³. Innerhalb dieser Zeit wurde mit einer Elutionsmittelmenge eluiert, welche ca. 230 Melkoperationen entsprach. Wegen der mangelnden Stabilität des Generators über längere Zeit ist bei höheren Ansprüchen an die Reinheit des Ba-137m eine zeitlich begrenzte Anwendung empfehlenswert (etwa 2 Wochen). Das Verfahren ist jedoch gut reproduzierbar und einfach.

4.3. In-115m-Generator nach J. Törkö

Von J. Törkö (78) wurde ein Generator zur Gewinnung von In-115m beschrieben. Nach den Angaben des Autors wurde dieses Melksystem hergestellt und überprüft. Die Elution des In-115m erfolgte mit 25 ml 0,15 n HCl. Die Elutionsgeschwindigkeit betrug 1 ml/min.

1) Meßmethoden

Die Messung der Aktivität erfolgte in einem BohrlochSzintillationszähler. Unter diesen Bedingungen wird sowohl Cd-115 (0,52 und 0,49 MeV) als auch In-115m

(0,33 MeV) gemessen. Die Zählausbeute für die beiden
Nuklide ist jedoch verschieden. Es war daher notwendig,
die gemessenen Impulsraten mit Hilfe der relativen Zählausbeuten zu korrigieren. Die Bestimmung der relativen
Zählausbeute erfolgte mit Hilfe eines Vergleiches von

) - spektrometrischen Messungen und Messungen im Bohrloch-Szintillationszähler.

Bei der Berechnung der Ausbeuten wurde auf die jeweils in der Säule vorhandene Aktivität an In-115m bezogen. Jede aus der Austauschersäule eluierte Fraktion wurde in Abständen von mehreren Stunden wiederholt gemessen.

2) Meßergebnisse

Tabelle 17 gibt eine Übersicht über die Meßergebnisse.

Spalte 1 gibt die insgesamt eluierte Aktivität an In-115m

an. Wie aus Spalte 2 ersichtlich ist, entsprach diese

Aktivität in allen Fällen innerhalb der Fehlerbreite einer

Ausbeute an In von etwa 100 %. Spalte 3 zeigt die gleichzeitig eluierte Aktivität an Cd-115. In der letzten Spalte ist der bei den einzelnen Melkoperationen erzielte Dekontaminationsfaktor eingetragen. Er nahm innerhalb der 10-tägigen Betriebsdauer von ca. 2,9 . 10⁴ auf 1,5 . 10³ ab. Eine Veränderung der Säurekonzentration der Elutionslösung brachte keine Verbesserung.

3) Zusammenfassung

Der hohe Dekontaminationsfaktor und die hohe Ausbeute stimmen mit den Angaben von Törkö überein. Die in der vorliegenden Arbeit eingesetzten Aktivitäten waren jedoch so hoch, daß auch die Veränderung des Dekontaminationsfaktors mit der Betriebsdauer gemessen werden konnte. Wie aus Tabelle 17 ersichtlich ist, war nach einer Betriebsdauer von 10 Tagen das Eluat zu etwa 1 0/00 mit Cd verunreinigt. Wenn man jedoch die geringe Halbwertzeit des Mutternuklids berücksichtigt, scheint diese Reinheit für die meisten Zwecke ausreichend. Der Generator arbeitet demnach zufriedenstellend.

4.4. La-140-Generator nach K. H. Lieser und K. Bächmann

Der von Lieser und Bächmann (79) beschriebene Generator wurde in größeren Abmessungen hergestellt. Abb. 6 zeigt die Ausmaße der verwendeten Austauschersäule. Die Konstruktion entsprach dem von Doering, Tucker und Stang (69) angegebenen Generator für Y-90. Als Austauscher

diente Dowex-50 x 8,50 - 100 mesh. Nach Waschen mit HCl (zur Entfernung von Verunreinigungen) wurde das Harz mit Hilfe von 1 m NH₄Cl in die Ammoniumform gebracht und anschließend bis zur Gleichgewichtseinstellung mit einer 0,5 m Lösung von Milchsäure, welche mit NH₃ auf pH 4,60 eingestellt war, gewaschen. Ba-140 wurde trägerfrei in neutraler Lösung aufgebracht. Anschließend wurde die Säule mit 1 l 0,5 m Lactatlösung gewaschen.

1) Bestimmung der Aktivitätsverteilung im Eluat Etwa 120 Stunden nach Herstellung des Generators wurde mit den Elutionen begonnen. Während dieser Zeit hatte sich das radioaktive Gleichgewicht wieder weitgehend eingestellt, so daß die genaue Auswertung der Meßergebnisse gewährleistet war. Die Elutionsgeschwindigkeit betrug stets 4 ml/min. Zunächst wurde die Elution des La-140 untersucht. Dazu wurde mit 0,5 m bzw. 1,0 m Lactatlösung eluiert und das Eluat in Fraktionen zu je 10 ml aufgefangen. Die Messung der Proben erfolgte im Bohrloch-Szintillationszähler. Abb. 7 zeigt die unter diesen Bedingungen gefundenen Elutionskurven für 0,5 m und 1,0 m Lactatlösung. Man erkennt, daß das Lanthan mit 0,5 m Lösung nur schleppend aus der Säule austrat. In den ersten 200 ml des Eluates befanden sich nur 6 % des insgesamt auf der Säule vorhandenen La-140. Mit 1,0 m Lactatlösung wurde jedoch La-140 in einer scharfen Bande eluiert. Die Ausbeute betrug in den ersten 200 ml 69 %. Auf Grund dieser Erfahrungen wurde die

Konzentration an Milchsäure auf 1,0 Mol/l festgelegt; der pH-Wert der Lösung betrug stets 4,60. Für jede Melkoperation wurde eine Elutionsmittelmenge von 200 ml gewählt.

2) Durchführung der Melkoperationen

Je drei Melkoperationen wurden ausgewertet, je fünf darauffolgende nicht. Dieser Zyklus wurde mehrmals wiederholt. Auf
diese Weise wurde die Säule mit einer Lösungsmenge eluiert,
welche 25 Melkoperationen entsprach.

Tabelle 18 gibt eine Übersicht über die ausgeführten Versuche.

3) Diskussion der Ergebnisse

Ausbeute und Dekontaminationsfaktor blieben während der Versuchsreihe weitgehend unverändert. Wenn man berücksichtigt, daß es wegen der relativ langen Halbwertzeit des Tochternuklids nicht sinnvoll ist, die Melkoperationen in kürzeren Abständen als 24 Stunden durchzuführen, entspricht der Zyklus von 25 Melkoperationen einem Zeitraum von mindestens 25 Tagen. Das sind 2 Halbwertzeiten des Mutternuklids. Die Verteilung des Mutternuklids auf der Säule würde noch etwa 10 Melkoperationen sinnvoll erscheinen lassen, so daß das Melksystem mit genügender Sicherheit so lange betrieben werden könnte, bis bei Maximalbelastung die Gesamtaktivität des Generators auf etwa 10 - 15 % abgesunken ist. Unter diesen Bedingungen scheint die Verwendung von Milchsäure für einen La-140-Generator durchaus sinnvoll.

5. Neuentwicklungen

In der Literatur sind im wesentlichen zwei Methoden beschrieben, um Ba-137m in Form eines Generators oder "Melksystems" von Cs-137 abzutrennen. Die eine Methode beruht auf der Fixierung des Cäsiums auf Dowex-50 und der Elution des Ba-137m mit EDTA (80, 81). Sie hat den Nachteil, daß das Cäsium nach einer relativ kleinen Zahl von Melkoperationen durchbricht. Die zweite Methode beruht auf der Anwendung der hohen Selektivität anorganischer Ionenaustauscher für Cäsium. Blau, Zielinsky und Bender (77) beschrieben einen Generator auf der Basis von Ammoniummolybdatophosphat (siehe Kapitel 4.2.).

Wegen der langen Halbwertzeit des Cs-137 ist es wünschenswert, einen Generator längerer Lebensdauer zur Verfügung zu haben. Bastian und Lieser (82) verwendeten Titanhexacyanoferrat (II) zum Fixieren des Cäsiums. Der Dekontaminationsfaktor dieses Generators blieb zwar über etwa 1/2 Jahr lang unverändert (etwa 10⁴), die Ausbeute an Barium war jedoch verhältnismäßig gering (einige Prozent) und fiel mit dem Alter des Generators stetig ab. Der Grund dafür lag in der Diffusion der Cäsiumionen ins Innere des Titanhexacyanoferrats, wodurch sich auch das durch den radioaktiven Zerfall entstandene Barium der Elution entzog. Es lag daher nahe, nach einer Möglichkeit zu suchen, ein Hexacyanoferrat in einer dünnen Schicht auf einem

inerten Träger aufzubringen, um auf diese Weise das Barium rasch eluieren zu können.

1) Herstellung des Austauschers

Von V2A-Stahl wurden Sägespäne hergestellt und in Fraktionen gesiebt. Um eine große Oberfläche zu erhalten, wurde ein Präparat mit kleiner Korngröße ausgewählt.

40 g solcher Edelstahlspäne wurden mit 40 ml 0,5 m ${
m K}_3{
m Fe(CN)}_6$ -Lösung auf etwa ${
m 50}^{\rm O}{
m C}$ erwärmt und tropfenweise mit 80 ml in HCl versetzt. Dabei setzte eine langsame Blaufärbung der Späne ein. Die überstehende, trübe Lösung wurde abgegossen, das Produkt gut gewaschen und vorsichtig getrocknet.

1 g des so hergestellten Präparates enthielt 10 mg Eisenhexacyanoferrat. Die Stabilität des Präparates wurde durch leichtes Schütteln mit 0,01 n HCl geprüft. Das Präparat blieb dabei äußerlich über Monate unverändert. In der Lösung wurde kein Hexacyanoferrat gefunden, wohl aber Spuren von Eisen. Diese stammten von dem Träger (V2A-Stahl), der von der Salzsäure etwas angegriffen wurde.

2) Bestimmung der Kapazität für Cäsium

Die Kapazität des Präparates für Cäsium wurde radiochemisch

mit Hilfe von Cs-137 bestimmt. Einer bestimmten Menge des

Präparates wurden steigende Mengen an Cäsium (markiert mit

Cs-137) angeboten. 9,5 ml einer Lösung, die 10⁻² an HCl

war und verschiedene Konzentrationen an Cäsium enthielt,

wurden mit 0,5 g Austauscher versetzt und bis zur Gleich-

gewichtseinstellung geschüttelt. Die Konzentrationsabnahme in der Lösung wurde durch Messung der \mathfrak{z}^- - Strahlung in einem Bohrloch-Szintillationszähler ermittelt. Die Kapazität des Präparates betrug demnach 3,2 . 10^{-2} mval/g Präparat; das entspricht etwa 1 Mol Cäsium pro Mol Fe(CN) $_6^{4-}$.

3) Bestimmung der Verteilungskoeffizienten für Cäsium und Barium

Die $\rm K_d$ -Werte für Cäsium und Barium wurden in Abhängigkeit von der HCl-Konzentration gemessen. Die Lösungen enthielten Cs-137 und Ba-137m in trägerfreier Form. Abb. 8 zeigt die Abhängigkeit der $\rm K_d$ -Werte für die beiden Ionen von der HCl-Konzentration. Der $\rm K_d$ -Wert für Cäsium fiel mit fallender Säurekonzentration ab, während der $\rm K_d$ -Wert für Barium anstieg. Für die Herstellung eines Melksystems schien demnach $\rm 10^{-2}$ bis $\rm 10^{-3}$ n HCl als Elutionsmittel geeignet.

4) Kinetisches Verhalten

Die Kinetik der Beladung des Präparates mit Cäsium und der Elution des Ba-137m wurden getrennt untersucht. Die Halbwertzeit für die Beladung mit Cäsium lag in der Grössenordnung von einigen Minuten und ist von der Rührgeschwindigkeit abhängig. Ein langsamerer Schritt, welcher der Diffusion der Ionen ins Korninnere entspricht, wurde nicht beobachtet.

Die Elution des Ba-137 erfolgte sehr rasch.

5. Herstellung der Generatoren

Es wurden zwei Generatoren mit verschiedenen Dimensionen hergestellt.

a) Generator Nr. 1

Eine Säule von 1 cm Durchmesser wurde 1 cm hoch mit dem nicht beladenen Präparat gefüllt und mit einer Schicht von 1 g des Präparates überschichtet, das mit 400 uCi Cs-137 (trägerfrei) beladen war. Die Säule wurde mit 20 ml 0,01 n HCl nachgewaschen.

b) Generator Nr. 2

Eine Säule von 0,5 cm Durchmesser wurde 5 cm hoch mit 3,7 g Substanz gefüllt. Nach Abdecken mit wenig Glaswolle wurde die Säule mit 0,5 g Substanz überschichtet, die mit etwa 30 µCi Cs-137 beladen war. Nach etwa 450 Melkoperationen (3,5 Monaten) wurden weitere 0,1 g Substanz, beladen mit 2 mCi Cs-137, aufgegeben.

Für beide Generatoren wurden folgende Elutionsbedingungen für die Melkoperationen als günstig gefunden:

Elutionsgeschwindigkeit: 5 ml/min

Elutions volumen: 5 ml

Elutionsmittel: 10^{-3} n HCl oder 10^{-2} n HCl

Unter diesen Bedingungen dauerte eine Melkoperation etwa 1 min, was im Hinblick auf die Halbwertzeit des Ba-137m (2,6 min) sinnvoll erscheint.

6. Diskussion der Ergebnisse

Mit beiden Generatoren wurde eine große Zahl von Melkoperationen durchgeführt, wobei in bestimmten Abständen immer wieder die radiochemische Reinheit und der Dekontaminationsfaktor bestimmt wurden. Auf diese Weise wurden Erfahrungen über das Verhalten der Generatoren bei starker Belastung und bei längerer Lagerung ohne Benutzung gewonnen.

a) Generator Nr. 1

Tabelle 19 gibt eine Übersicht über die mit dem Generator Nr. 1 durchgeführten Versuche und ihre Ergebnisse. In Spalte 1 ist das Alter des Generators eingetragen, in Spalte 2 die Nummer der betrachteten Melkoperation und in Spalte 3 das verwendete Elutionsmittel. Aus der eluierten, auf den Zeitpunkt der Trennung extrapolierten Impulsrate an Ba-137m (Spalte 4) und der Restimpulsrate (Spalte 5) berechnen sich der Dekontaminationsfaktor (Spalte 6) und die Ausbeute (Spalte 7). Während der ersten 67 Tage wurde der Generator mit 10⁻² n HCl eluiert. Der Dekontaminationsfaktor betrug unter diesen Bedingungen 10^5 bis 10^6 . Von der 53. Melkoperation an wurde 10^{-3} n HCl als Elutionsmittel verwendet. Dadurch stieg der Dekontaminationsfaktor an und blieb während der folgenden Betriebszeit von etwa 295 Tagen auf 10⁶ bis 10⁷. Die Ausbeute betrug unabhängig vom Elutionsmittel 40 - 60 %. Bisher wurde der Generator 5760 Melkoperationen unterworfen, wobei keine Veränderung in der Arbeitsweise festgestellt werden konnte.

Wenn der Generator längere Zeit (mehr als 20 Tage) nicht be-

nutzt wurde, fiel der Dekontaminationsfaktor bei der unmittelbar auf die Lagerung folgenden Melkoperation von etwa 10⁶ auf etwa 10⁵ ab (Tab. 21). Die anschließenden Melkoperationen zeigten wieder den erwarteten hohen Dekontaminationsfaktor.

b) Generator Nr. 2

Tab. 20 gibt eine Übersicht über die Versuche mit dem Generator Nr. 2 und die Meßergebnisse. Als Elutionsmittel diente 10^{-3} n HCl Während der ersten 113 Tage war der Generator mit 30 µCi Cs-137 beladen. Während dieser Zeit war der Dekontaminationsfaktor stets größer als 10⁵ bis 10⁶. Wegen der geringen Restaktivität war eine genaue Angabe nicht möglich. Deshalb wurde der Generator nach 113 Tagen mit 2 mCi Cs-137 beladen. Auch unter diesen Bedingungen blieb die Restaktivität sehr klein. Der Dekontaminations faktor lag zwischen 10⁵ und 10⁷. Der Generator ist seit 195 Tagen in Betrieb und wurde 5760 mal eluiert. Bisher konnte kein Abfall in der Leistung festgestellt werden. Es wurde jedoch gefunden, daß dieser Generator empfindlicher war gegen eine Lagerung ohne Benutzung als Generator Nr. 1. Die Erhöhung der Restimpulsrate und damit die Erniedrigung des Dekontaminationsfaktors trat bereits nach etwa 4-tägigem Stehen deutlich in Erscheinung. Dann waren 1-2 Melkoperationen erforderlich, um die ursprünglichen Dekontaminationsfaktoren wieder zu erreichen (Tab. 21).

Die Ursache für diesen Effekt ist wahrscheinlich in den Strahlenschäden zu suchen, die durch die ß - Strahlung hervorgerufen wurden. Dafür spricht auch die Tatsache, daß dieser Effekt vorzugsweise bei Beladung mit höherer Aktivität in Erscheinung tritt.

Wenn man das Ba-137m stets mit hohem Dekontaminationsfaktor eluieren will, so ist es zweckmäßig, den Generator zu waschen und dann etwa 20 min bis zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts zu warten.

7) Zusammenfassung

Durch Behandlung von Stahlspänen mit Hexacyanoferrat wurde ein Präparat hergestellt, das nur an der Oberfläche mit Eisenhexacyanoferrat belegt war und ebenso wie alle anderen Hexacyanoferrate eine hohe Selektivität für Cäsium aufwies. Das Präparat wurde zur Abtrennung von Ba-137m aus Cs-137 in Form eines Generators verwendet. Die Elution des Generators erfolgt mit 5 ml 10⁻³ n HCl; der Zeitbedarf für eine Abtrennung beträgt 1 min. Die Ausbeute an Ba-137m liegt zwischen 40 und 80 %. Der Dekontaminationsfaktor ist größer als 10⁶.

Während einer Betriebsdauer von 295 Tagen und nach mehr als 5700 Melkoperationen trat keine Veränderung in den Eigenschaften des Generators auf.

5.2. Rh-103-Generator

Zwei verschiedene Methoden zur Fixierung von Pd-103 in einer Säule wurden untersucht. Aus der Literatur (85 -87) ist bekannt, daß Palladium von Rhodium auf Grund

der unterschiedlichen Stabilität der Chlorokomplexe mit Hilfe einer Anionenaustauschersäule getrennt werden kann. Daher lag der Gedanke nahe, Pd-103 als Chlorokomplex auf einem Anionenaustauscher zu fixieren und das Tochternuklid Rh-103m unter möglichst milden Bedingungen zu eluieren. Um die weitere Verwendung der Rhodiumlösung zu erleichtern, wurde zur Elution der Säule eine HCl-Konzentration gewählt, die der Chloridkonzentration einer physiologischen Kochsalzlösung nahekam. Zwei Generatoren wurden hergestellt, wobei einerseits Dowex-2X8 andererseits Amberlite-IRA-93 als Ionenaustauscher verwendet wurden. Die beiden Generatoren werden im folgenden als Generatoren A-1 und A-2 bezeichnet. Außerdem wurde die Fixierung von Pd-103 in Form eines schwer löslichen Komplexes auf einem Trägermaterial untersucht. Als Komplexbildner wurde Diacetyldioxim wegen seiner Selektivität für Palladium in sauren Lösungen gewählt, als Trägermaterial Aluminiumoxid. Der Palladiumkomplex wurde aus Chloroformlösung auf das Adsorptionsmittel aufgebracht. Die Elution des Rh-103m erfolgte mit Hilfe von verdünnter HCl. Dieser Generator wird in der Folge als Generator B bezeichnet.

1) Herstellung der Generatoren

70 mg Palladiumoxid wurden 7 Tage lang bei einem Fluß von $10^{14}~\rm cm^{-2}$. $\rm sec^{-1}$ mit thermischen Neutronen im Reaktor FR 2 im Kernforschungszentrum Karlsruhe bestrahlt. Nach

dem Abklingen der kurzlebigen Nuklide wurde die Probe in Königswasser gelöst und zwei- bis dreimal mit konzentrierter HCl abgeraucht. Die Aktivität wurde mit verdünnter HCl aufgenommen und die Lösung auf 25 ml aufgefüllt, so daß die Säurekonzentration etwa 0,5 Mol/l betrug.

a) Herstellung von Generator A-1 und A-2 Aus 15 ml der oben erwähnten Lösung wurde nach Verdünnung mit 0,5 m HCl das Palladium mit alkoholischer Diacetyldioxim-Lösung gefällt und der entstandene Palladiumkomplex mit etwa 100 ml Chloroform extrahiert. Die wäßrige Phase wurde nochmals mit etwa 50 ml Chloroform gewaschen. Die vereinigten Chloroform-Fraktionen wurden zur Reinigung zweimal mit je 50 ml 0,5 m HCl extrahiert. Der Reinheitsgrad der organischen Phase wurde an Hand der χ - Spektrometrie überprüft. Es wurde festgestellt, daß die organische Phase nur noch Pd-103 enthielt. Ag-111 und die verschiedenen Rhodium-Isotope waren nur noch in der wäßrigen Phase nachweisbar. Die Chloroform-Lösung wurde auf 250 ml aufgefüllt (Stammlösung). 200 ml dieser Lösung wurden unter dem Oberflächenverdampfer eingedampft und je zweimal mit HNO3 bzw. HCl abgeraucht. Schließlich wurde mit etwa 0,5 n HCl aufgenommen und die Lösung auf 10 ml aufgefüllt. Nach Entnahme eines aliquoten Teiles der Lösung wurde die Aktivität bestimmt. 5 ml dieser

Lösung wurden auf eine Ionenaustauschersäule von

10 mm Durchmesser, die bis zu einer Höhe von 50 mm mit Dowex-2X8 gefüllt war, aufgebracht. Die Säule wurde mit wenig 0,5 m HCl gewaschen. Nach erneuter Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts zwischen Pd-103 und Rh-103m wurde mit den Melkoperationen begonnen (Generator A-1). Unter ähnlichen Bedingungen wurde ein weiterer Generator hergestellt (Generator A-2), der als Anionenaustauscher das makroporöse Harz Amberlite-IRA-93 enthielt. Die Säulenabmessungen und die Elutionsbedingungen waren die gleichen wie bei Generator A-1.

b) Herstellung von Generator B

versetzt. Nach einigen Minuten leichten Schüttelns wurde das Trägermaterial abfiltriert. Aus der Aktivitätsdifferenz der Chloroform-Lösung vor und nach der Adsorption des Komplexes wurde die auf dem Aluminium-oxid adsorbierte Impulsrate an Pd-103 bestimmt. Mehr als 95 % der Pd-103-Menge wurde bei der Operation auf dem Träger adsorbiert. Eine Säule, die einen Durchmesser von 15 mm hatte und bis zu einer Höhe von 10 mm mit reinem Aluminiumoxid gefüllt war, wurde mit dem Präparat überschichtet. Der Generator wurde mit 0,2 m HCl gewaschen. Nach erneuter Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes wurde mit den Melkoperationen begonnen. Alle Generatoren wurden mit 0,2 m HCl eluiert.

2) Aufnahme der Elutionskurven

Das Eluat wurde in Fraktionen zu je 1 bis 1,5 ml aufgefangen und die Impulsrate des Rh-103m mit der Methode der Flüssigszintillation gemessen.

Abb. 9 zeigt die Elutionskurven der drei Generatoren. Aus der Abbildung ist ersichtlich, daß das Nuklid aus Generator A-2, der das makroporöse Harz enthielt, am schärfsten eluiert wurde. Das Elutionsmaximum befand sich bei 2 ml. Relativ scharf erfolgte die Elution des Rh-103m auch an Generator A-1 (Dowex-2X8); das Elutionsmaximum lag bei diesem Versuch bei etwa 4,5 ml. Schleppender gestaltete sich der Verlauf der Elution an Generator B(Palladiumdiacetyldioxim auf Aluminiumoxid). An Hand dieser Ergebnisse wurde für alle drei Generatoren einheitlich ein Elutionsvolumen von 15 ml festgelegt. Bei der Verwendung des makroporösen Austauschers genügt ein geringeres Volumen an Elutionslösung (5 - 10 ml).

3) Durchführung der Melkoperationen

Alle drei Isotopengeneratoren wurden einem Zyklus von Melkoperationen unterworfen, wobei jeweils drei Melkoperationen ausgewertet wurden, eine Reihe anderer nicht.

Der Zeitraum der Untersuchung betrug etwa 50 Tage. Die Tabellen 22 - 24 geben eine Übersicht über die Melkoperationen. In Spalte 1 ist jeweils die Nr. der Melkoperation angegeben, in Spalte 2 das Alter des Generators in Tagen, in Spalte 3 die in 2 ml des Eluates gemessene Impulsrate an Rh-103 m und in Spalte 5 die in 2 ml des

Eluates gemessene Impulsrate an Pd-103. Bei den in Spalte 5 angegebenen Werten sind die relativen Zählausbeuten für Rh-103m und Pd-103 berücksichtigt, welche gesondert mit Hilfe einer quantitativen Pd-103/Rh-103m-Trennung (durch Extraktion des Palladium-Diacetyldioximkomplexes in Chloroform) bestimmt wurden. (Unter den Meßbedingungen stammten von der im radioaktiven Gleichgewicht gemessenen Impulsrate 58,5 % von Rh-103m und 41,5 % von Pd-103.) Aus den Werten der Spalten 3 und 5 wurden die Dekontaminationsfaktoren (Spalte 6) errechnet. Der Dekontaminationsfaktor stellt den Quotienten aus der abgetrennten Rh-103m-Aktivität und der im Eluat vorhandenen Pd-103-Aktivität dar. Die letzte Spalte gibt die Ausbeute der Trennoperation wieder.

4) Diskussion der Ergebnisse

Im Falle der Generatoren A-1 und A-2 (Fixierung des Mutternuklids als Chlorokomplex auf einem Anionenaustauscher) entsprach die Reinheit des Tochternuklids den Anforderungen.

Der Dekontaminationsfaktor war in allen Fällen größer als 10⁴. Die Ausbeute der Trennoperation betrug stets 20 - 25 %.

Da Rhodium nur in dreiwertigem Zustand leicht eluierbar ist, ist die relativ geringe Ausbeute vermutlich auf die Bildung anderer Wertigkeitsstufen des Rhodiums beim radioaktiven Zerfall zurückzuführen. Bei beiden Generatoren wurden über 200 Melkoperationen durchgeführt. Diese Zahl entspricht 4 Melkoperationen pro Tag über einen Zeitraum von 3 Halb-wertzeiten des Mutternuklids Pd-103. Bei dieser maximalen

Belastung trat keine Veränderung im Verhalten der Isotopengeneratoren auf. Weder ein mehrmals hintereinander erfolgtes Abmelken der Isotopengeneratoren innerhalb eines kurzen Zeitraumes noch eine längere Lagerung ohne Benutzung zeigten einen Einfluß auf die Reinheit oder die Ausbeute des Tochternuklids. Der Zeitbedarf für eine Trennoperation betrug etwa 5 - 6 Minuten. Bei Verwendung eines makroporösen Austauschers kann jedoch die Dauer einer Operation einerseits durch Verringerung des Elutionsvolumens, andererseits durch Erhöhung der Durchflußgeschwindigkeit auf etwa eine Minute verkürzt werden. Generator B (Fixierung des Mutternuklids als Diacetyldioximkomplex auf Aluminiumoxid) lieferte weniger gute Resultate. Der Dekontaminationsfaktor zeigte Werte zwischen 43 und 270. Auch die Ausbeute war bei dieser Trennmethode mit etwa 7 % wesentlich niedriger. Versuche, durch Unterschichten der die Aktivität tragenden Schicht mit Aluminiumoxid, welches inaktiven Palladium-Komplex trug, die Reinheit des eluierten Rh-103m zu erhöhen, führten nicht zu einem besseren Ergebnis. Vergleicht man diese Resultate mit einer von J. Törkö (88) beschriebenen Extraktionsmethode, so ergibt sich folgendes Bild: Die Generatoren des Typs A liefern Rh-103m mit einer Reinheit, die mindestens 2 bis 3 Zehnerpotenzen höher ist als nach dem Extraktionsverfahren von J. Törkö. Die Ausbeuten sind bei beiden Methoden praktisch gleich. Ein wesentlicher Vorteil der hier beschriebenen Methode liegt in der Verwendung einer Trennsäule.

Generator B liefert Rh-103m in etwa der gleichen Reinheit wie der Generator nach J. Törkö, die Ausbeute ist jedoch um etwa den Faktor 3,5 kleiner.

5.3. Kr-83m-Generator

1) Meßmethoden

Die Messung von Kr-83m erfolgte mit Hilfe eines Gasdurchflußzählers. Die Aktivität von Rb-83 wurde in einer lowlevel-Zählanordnung bestimmt. Zur Berücksichtigung der
verschiedenen Zählausbeuten wurde ein geeignetes Verfahren
entwickelt, das es außerdem erlaubte, genaue Messungen
auch bei Gegenwart anderer Rb-Isotope durchzuführen.

2) Herstellung der Generatoren

a) Säule 1:

0,78 g feuchter Austauscher (Dowex-50WX12, 50 - 100 mesh) wurden mit Rb-83 beladen. Die überschüssige Lösung wurde nach der Gleichgewichtseinstellung abgesaugt, das beladene Harz in bidestilliertem Wasser aufgeschlämmt und in eine Säule übergespült, die mit 1,5 g unbeladenem Austauscher gefüllt war. Zwischen dem beladenen und dem unbeladenen Austauscher befand sich eine dünne Schicht Glaswolle. Die Gesamthöhe des Austauschers in der Säule betrug 3,5 cm.

b) Säule 2:

Säule 2 wurde mit einer größeren Aktivitätsmenge beladen. Die Beladung erfolgte wie unter a) beschrieben; die Gesamthöhe des Austauschers betrug 8,5 cm.

3) Beschreibung der Versuche

a) Säule 1:

Als Elutionsmittel diente bidestilliertes Wasser. Um den Einfluß der Durchflußgeschwindigkeit auf Ausbeute und Dekontaminationsfaktor zu untersuchen, wurde die Elutionsgeschwindigkeit zwischen 0,5 und 6 ml/min variiert. Bei jeder Durchflußgeschwindigkeit wurden drei Melkoperationen durchgeführt. Tabelle 25 gibt eine Übersicht über die Meßergebnisse. In Spalte 1 ist die Nummer der Melkoperationen angegeben, in Spalte 2 die Durchflußgeschwindigkeit, in Spalte 3 die Ausbeute und in Spalte 4 der Dekontaminationsfaktor. Da die im Eluat vorhandene Impulsrate an Rb-83m geringer war als die statistischen Schwankungen des Untergrundes, wurde zur Berechnung des Dekontaminationsfaktors die doppelte statistische Abweichung des Untergrundes herangezogen. Die angegebenen Werte stellen daher untere Grenzwerte des Dekontaminationsfaktors dar. Man erkennt aus Tabelle 25, daß innerhalb der Fehlergrenze weder ein Einfluß der Durchflußgeschwindigkeit auf die Ausbeute der Trennung noch auf die Reinheit des

Kr-83m nachweisbar war. Die bei jeder Melkoperation zusätzlich bestimmte Form der Elutionskurve war ebenfalls praktisch unabhängig von der Durchflußgeschwindigkeit.

b) Säule 2:

Die Elutionsgeschwindigkeit wurde mit 5 ml/min festgelegt. Der Generator wurde einem Zyklus von Melkoperationen unterworfen, wobei eine Reihe von Melkoperationen ausgewertet wurde und bei einer Reihe anderer nur die Restaktivität bestimmt wurde. Außerdem wurde nach einer verschiedenen Zahl von Operationen die Aktivitätsverteilung des Rb-83 auf der Säule gemessen. Tabelle 26 gibt eine Übersicht über die Melkoperationen und die Meßergebnisse. In Spalte 1 ist die Nummer der Melkoperation angegeben (bei jeder Melkoperation wurden 15,4 ml eluiert), in Spalte 2 die in der Krypton-reichsten Fraktion der Melkoperation gemessene Impulsrate an Kr-83m, in Spalte 3 die in dieser Fraktion gemessene Impulsrate an Rb-83 und in Spalte 4 der Dekontaminationsfaktor. Die Impulsraten sind als relative Größen in cm² der aus dem Schreiberstreifen ausgewerteten Peakfläche angegeben. Die Dekontaminationsfaktoren stellen untere Grenzwerte dar, da für die Rb-83-Aktivität im Eluat der doppelte statistische Fehler des Untergrundes angenommen werden mußte.

Abb. 10 zeigt die Aktivitätsverteilung von Rb-83 auf der Säule vor und nach 331 Melkoperationen.

4) Diskussion der Ergebnisse

Der beschriebene Kr-83m-Generator wurde insgesamt 331 Melkoperationen unterworfen. Der Dekontaminationsfaktor blieb während der gesamten Betriebszeit über 10⁶, wobei die angegebenen Werte untere Grenzwerte darstellen. Eine Wanderung des Mutternuklids auf der Säule konnte nicht festgestellt werden. Die Ausbeute der Methode liegt bei etwa 90 %. Die Durchflußgeschwindigkeit von 5 ml/min gewährleistet eine rasche Abtrennung. Eine Melkoperation dauert etwa 4 min. Der beschriebene Generator entspricht demnach den an ihn gestellten Anforderungen.

5.4. Sr-87m-Generator

1) Beschreibung der Versuche

Es wurde gezeigt, daß es durch Einhalten bestimmter Sulfonierungsbedingungen möglich ist, einen Austauscher herzustellen, der nur an der Oberfläche Sulfonsäuregruppen trägt. Das oberflächlich sulfonierte Harz zeigte kinetisch ein sehr viel günstigeres Verhalten (Halbwertzeit des Austauschers etwa 0,5 min gegenüber 5 min bei Dowex 50 x 12). Diese Eigenschaft ist für schnelle

Trennungen von besonderem Interesse. Die geringe Kapazität (5,5 . 10⁻⁴ mval/g) stellt keinen Nachteil dar, wenn es möglich ist, trägerfreie Nuklide einzusetzen.

Durch Messung der K_D-Werte wurde festgestellt, daß es mit Hilfe des beschriebenen Austauschers möglich ist, eine Sr/Y-Trennung unter einfachen Bedingungen durchzuführen. Als Elutionsmittel diente verdünnte Salzsäure.

Die Vorversuche wurden mit den Nukliden Sr-85 (trägerfrei) und Y-90 (trägerfrei) durchgeführt.

Eine Austauschersäule von 1 cm Durchmesser und 15 cm Füllhöhe wurde mit den beiden Nukliden beladen. Anschließend wurde mit 0,04 n HCl eluiert. Die Elution des Strontiums erfolgte quantitativ, während das Yttrium auf der Säule fixiert blieb. Das Eluat wurde in Fraktionen aufgefangen und die Impulsrate der Lösung bestimmt. Für einen Generator schien eine Elutionsmittelmenge von 30 ml ausreichend.

Im Anschluß daran wurde die Wanderungsgeschwindigkeit des Yttriums auf der Austauschersäule gemessen. Dazu wurde die Säule mit 0,04 n HCl eluiert und in Abständen von mehreren hundert ml jeweils die Aktivitätsverteilung auf der Säule mit Hilfe eines GM-Zählrohres mit Bleiblende gemessen.

Abb. 11 gibt ein Bild vom Verhalten des Yttriums auf der Säule. Die Elutionsgeschwindigkeit war sehr hoch (10 ml/min). Man sieht, daß das Y-90 langsam auf der Säule wanderte und die Bande zunehmend breiter wurde. Y-90 konnte jedoch erst

ab etwa 1200 ml im Eluat durch Messung in einer low-level-Zählanordnung festgestellt werden. Als Vergleich wurde das Verhalten des Yttriums auch bei einer geringeren Durchflußgeschwindigkeit (4 ml/min) gemessen. Das Ergebnis ist in Abb. 12 dargestellt. Man sieht, daß das Maximum der Bande statt 6 cm nur 5 cm gewandert war und außerdem erheblich schärfer war.

2) Diskussion der Ergebnisse

Der neu hergestellte Austauscher erlaubt eine einfache Abtrennung des Strontiums von Yttrium. Das Elutionsmittel ist frei von nicht flüchtigen Zusätzen. Wenn für das Abmelken des Strontiums 30 ml Lösung verwendet werden, können etwa 30 bis 40 Melkoperationen durchgeführt werden, ohne daß das Yttrium durchbricht. Diese Zahl würde im Hinblick auf die Halbwertzeit des Y-87 genügen. Durch geeignete Dimensionierung der Säule ist es möglich, die Zahl der Melkoperationen zu erhöhen. Im Hinblick auf die Wanderung des Yttriums in der Säule ist eine Durchflußgeschwindigkeit von 4 ml/min angezeigt; dies würde eine Trennzeit von etwa 5 - 10 Minuten bedingen.

Versuche mit Y-87/Sr-87m wurden wegen Verzögerungen bei der Lieferung der Nuklide nicht durchgeführt.

5.5. Fr-223-Generator

Von K. H. Lieser und E. Kluge (83) wurde ein Fr-223-Generator beschrieben. Der Aufbau des Generators ist in Abb. 13

dargestellt. Als Elutionslösung dient eine 0,5 m $\mathrm{NH_{H}Cl}$ -Lösung, die 500 mg/l Cr O_3 enthält und mit NH $_3$ auf pH 9,5 (gegen pH-Papier) eingestellt ist. Der Generator wurde von den Autoren für etwa 10 Melkoperationen benützt. Der Anstieg der Ra-223-Aktivität im Eluat machte eine längere Verwendung unmöglich. In einer Überprüfung wurden die Angaben der Autoren bestätigt. Ein Nachteil der Methode liegt in der relativ hohen Chromatkonzentration im Eluat. Ziel der Untersuchungen war es daher, den Generator so weiterzuentwickeln, daß eine Elutionslösung ohne Chromatzusatz verwendet werden kann. In Vorversuchen wurde festgestellt, daß ein Präparat, bestehend aus Silicagel und BaCrO, sowohl Radium als auch Thallium nur unbefriedigend festhielt. Auch ein Präparat, das BaSO, und BaCrO, nebeneinander auf Silicagel enthielt, war zur Abtrennung von Ra-223 und T1-207 nicht geeignet. In weiteren Versuchen wurden Präparate, welche BaCrO u auf Silicagel enthielten, mit solchen gemischt, die BaSO₁₁ auf Silicagel trugen. Auch solche Mischungen brachten nicht den gewünschten Erfolg. Schließlich wurde die der Dowex-50-Säule nachgeschaltete Säule mit einem BaSO₁₁/Silicagel-Präparat gefüllt und mit BaCrO_h Pulver überschichtet. Mit Hilfe einer derartigen Säule konnte ein Eluat erhalten werden, das frei war von Tl-107 und nur wenig Ra-223 enthielt.

1) Beschreibung der Versuche:

Nach den Angaben von K. H. Lieser und E. Kluge wurde ein

Fr-223-Generator (Abb. 13) hergestellt. Die erste Säule wurde entsprechend den Angaben der Autoren 6 cm hoch mit Dowex-50 in der Ammoniumform gefüllt. Die nachgeschaltete Säule wurde 4 cm hoch mit einem nach K. H. Lieser und W. Hild (84) hergestellten BaSO₄/Silicagel-Präparat gefüllt und mit pulverförmigem BaCrO₄ O,5 cm hoch überschichtet. Als Elutionsmittel diente O,5 m NH₄Cl-Lösung (pH 9,5). Die Elutionsgeschwindigkeit wurde mit Hilfe von Druckluft auf etwa 3 ml pro Minute eingestellt. Die erste Säule wurde mit etwa 100 µCi Ac-227 beladen.

Die Analyse des Eluats erfolgte durch Messung des Aktivitätsabfalls der eluierten Proben in einem Bohrloch-Szintillationszähler. Diese Methode gestattete es, auf Grund der verschiedenen Halbwertzeiten Ra-223, T1-207 und Fr-223 zu bestimmen. Durch Messung der Aktivitätsverteilung im Eluat wurde zunächst das günstigste Elutionsvolumen ermittelt und dann mit 50 ml festgelegt.

Der Generator wurde einem Zyklus von Melkoperationen unterworfen, wobei eine Reihe von Melkoperationen ausgewertet wurden, eine Reihe anderer nicht.

Tabelle 27 gibt eine Übersicht über die Meßergebnisse. In der ersten Spalte ist die Nummer der Melkoperation angegeben, in der zweiten die eluierte Impulsrate an Fr-223 in ipm und in der dritten die an Ra-223 im Eluat gemessene Impulsrate. 10 Melkoperationen zu je 50 ml konnten durchgeführt werden, ohne daß Tl-207 im Eluat nachgewiesen

werden konnte. Von der 15. Melkoperation an wurde T1-207 im Eluat gefunden. Die Versuchsreihe wurde hierauf abgebrochen.

2) Diskussion der Ergebnisse:

Bei den untersuchten Melkoperationen stieg der Gehalt des Eluats an Ra-223 mit steigender Betriebsdauer stetig an. Nach den systematisch durchgeführten Versuchen muß angenommen werden, daß sich Ra-223 in der nachgeschalteten Säule anreichert und durch das ${\rm BaSO}_{\mu}$ -Präparat nur ungenügend festgehalten wird.

Es ist daher nicht möglich, auf dieser Basis einen Generator zu entwickeln, der eine größere Zahl von Melkoperationen ermöglicht. Gegenüber dem Generator von K. H. Lieser und E. Kluge hat jedoch die Ausführung den Vorteil, daß das Elutionsmittel kein Chromat enthält und daher auch das Eluat chromatfrei bleibt. Der von K. H. Lieser und E. Kluge beschriebene Generator erlaubt ebenfalls nur eine beschränkte Zahl von Melkoperationen.

- 5.6. Versuche zur strahleninduzierten Fixierung von Chelaten auf PVC-Pulver
 - 1) Beschreibung der Versuche

Eine Schwierigkeit bei der Entwicklung von Melksystemen liegt in den hohen Anforderungen an die Reinheit der abgetrennten Nuklide sowie in den Anforderungen an das Elutionsmittel. In vielen Fällen sind Mutter- und Tochternuklide einander chemisch so ähnlich, daß die Anwendung

von Ionenaustauschern nicht zum Ziel führt. Es wurde daher der Versuch unternommen, substitutionsinerte Chelate großer Stabilität unter Ausnützung des Rückstoßes bei dem Zerfall des Mutternuklids für eine Trennung heranzuziehen. Von großem Interesse ist dabei die Frage nach der Art der Fixierung des Chelates auf einem inerten Träger. Diese soll im Hinblick auf eine gute Ausbeute der Trennoperation möglichst an der Oberfläche eines Trägers erfolgen, der keine Poren aufweist, die den Zutritt des Elutionsmittels erschweren könnten. Um diese Fixierung möglichst fest zu machen, wurde an die Knüpfung einer chemischen Bindung zwischen dem Chelat und der Oberfläche gedacht. Im Zusammenhang mit strahlenchemischen Untersuchungen im Institut wurde daher die Frage untersucht, wie weit es möglich ist, Chelate auf PVC durch Einwirkung von 🎢 - Strahlen zu fixieren. Es ist bekannt, daß Schiff'sche Basen strahlenchemisch relativ stabil sind. Deshalb wurden Chelate dieser Verbindungsklasse für die Untersuchungen herangezogen. Als Komplexbildner wurde Glyoxal-bis-hydroxyanil (GBHA) gewählt, das mit Uranylionen einen sehr stabilen Komplex bildet.

2) Zusammenfassung der Ergebnisse

a) Der Anteil an strahlenchemisch fixiertem GBHA war am größten, wenn die bestrahlten Tabletten im Gewichtsverhältnis PVC: GBHA = 1:1 zusammengepreßt waren und mit einem möglichst hohen Druck

gepreßt wurden. Unter vergleichbaren Bedingungen war der strahlenchemisch fixierte Anteil im Fall von GBHA größer als bei Chlor-GBHA.

- b) Zur Bestimmung der GBHA-Kapazität der Präparate wurden Beladungsversuche mit Kupferionen durchgeführt (Bildung von Kupfer-GBHA). Dabei zeigte sich, daß die Aufnahme der Cu²⁺-Ionen sehr stark von der Vorbehandlung der Präparate (Extraktion mit Methanol) und von dem Lösungsmittel bei der Beladung beeinflußt wurde. Das Lösungsmittel Methanol bewirkte offenbar eine Quellung des PVC-Pulvers, bei der Kupferionen eingeschlossen wurden. Die Bestimmungsmethode lieferte dementsprechend keine eindeutigen Ergebnisse.
- c) Bei der Bestrahlung von PVC-GBHA-Tabletten mit einer y Dosis von 14 Mrad wurden Präparate erhalten, die je nach den Beladungsbedingungen zwischen 6 . 10⁻⁵ und 20 . 10⁻⁵ g Cu/g Präparat aufnahmen (9,45 31.4 . 10⁻⁷ Mole Cu / g).
- d) Die Kupfer-Aufnahme stieg mit der J Dosis bei der Bestrahlung der Tabletten an.
- e) Auch bestrahltes PVC nahm infolge des Quellungsvermögens bei der Aufarbeitung und Beladung mit methanolischen Lösungen Kupfer-Ionen auf.
- f) Die Behandlung der beladenen Präparate mit verdünnter Säure zeigte, daß nur ein Teil des aufgenommenen Kupfers reversibel gebunden war.

| Strahlendosis auf | durchschnittliche bei Verwe | Litera- | |
|----------------------|--------------------------------|---------------|-----|
| auı | 100 µCi Sr-87m | 100 µCi Sr-85 | tur |
| | | | |
| Knochen | 9,9 | 1590 | 1 |
| | 10,0 | 4430 | 2 |
| | 40,5 | 3700 | 3 |
| Ganzkörper | 2,2 | 680 | 1 |
| | 0,7 | 2290 | 2 |
| | 1,2 | 1100 | 3 |
| | | | |

Tabelle 2: Übersicht über interessierende Nuklidpaare

| Stellung im | | Eigenschaften des Mutternuklids | | | Eigenschaften des Tochternuklids | | |
|-----------------------------------------|---------------------------------------------------|---------------------------------|--------------------------|-------------------------------------------------------------------------|----------------------------------|-----------------------------|----------------------------------------------------------------|
| Periode Mut- ter- nu- klid in Grup- pe | Toch- ter- nu- klid in Grup- pe | Nuklid | Halbwertzeit | Strahlungsart und Energie (MeV) | Nuklid | Halbwertzeit | Strahlungsart und Energie (MeV) |
| I | 0 | Rb- 83 Ra-226 Ra-224 | 83 d 1600 a 3,64 d | K-Einfang % 0,52;0,53;0,55 ~ 4,78;4,60 % 0,19 ~ 5,68;5,45 | Kr- 83m Rn-222 Rn-220 | 1,9 h 3,82 d 55,6 sec | Isomerer Überg. \$-0,009 \$5,49 \$6,29 |
| III | I | Ac-227 Cs-137 | 21,8 a 30,0 a | \$ 0,24 \$ 0,04 \$ 0,5;1,2 kein \$ | Fr-223 Ba-137m | 21,8 m 2,55 m | \$ 1,2 \$ 0,05;0,08 Isomerer Überg. \$0,66 |
| III | II | Y - 87 Ac-227 | 80 h 21,8 a | 8+0,7 8-0,48 8-0,04 | Sr-87m Ra-223 | 2,8 h 11,43 d | Isomerer Überg. \$0,39 \$5,68;5,45 \$20,24 |
| II | III | Mg- 28 Sr- 90 | 21,3 h 28,1 a | 8 0,5 }_0,03;1,35;0,40;0,95 8 0,5 kein } | A1- 28 Y- 90 | 2,3 m 64,1 h | ß_2,9 %_1,78 ß_2,3; kein ß_0,8 |
| III | III | Cd-115 Ba-140 Ce-144 | 2,3 d 12,8 d 284 d | 8 1,11; \$ 0,52;0,49 8 0,5;1,0 \$ 0,54;0,16;0,30 8 0,3 | In-115m La-140 Pr-144 | 4,5 h 40,2 h 17,3 m | B 0,8° 20,34 B 1,4;2,2 1,60;0,49;0,33 B 3,0 |
| IV IV | II | Th-228 | 1,9 a | % 0,13;0,08 2,5,34;5,42 % 0,08;0,22 K-Einfang % 0,078;0,068 | Ra-224 Sc- 44 | 3,64 d 4,0 h | 3,70;2,19;1,49 45,68;5,45 3,0,24 8+1,5 3,1,16;2,54 |

| 1 | | | 4 | <u> </u> | | | _ | • | <u> </u> |
|---|------|------|--------|---------------------|---|---------------------|----------|--------------|---------------------------------|
| | IV | III | Ge- 68 | 275 | d | K-Einfang kein 🖍 | Ga- 68 | 68,3 m | ß ⁺ 1,9 1,08;0,80 |
| | | | Sn-113 | 115 | d | K-Einfang | In-113m | 1,66 h | Isomerer Überg. |
| | | | | | | ₽ 0,26 | | | ₹ 0,39 |
| | VI | IV | U-238 | 4,5.10 ⁹ | a | d 4,20;4,15 | Th-234 | 24,1 d | ß-0,2 |
| | | | | | | y | | | % 0,093;0,063 |
| | IA | v | Zr- 95 | 65,5 | đ | ß-0,4;0,9 | Nb- 95 | 35 d | ß ⁻ 0,2 |
| | | • | | | | % 0,72;0,76 | | | ¥° 0,77 |
| | VI | v | Se- 72 | 8,5 | d | K-Einfang | As- 72 | 26 h | ß+2,5;7,3 |
| | | | | | | % 0,046 | | | ₹ 0,83;0,63 |
| | v | VI | Sb-125 | 2,7 | a | ß 0,3;0,6 | Te-125m | 58 d | Isomerer Überg. |
| | | | | | | X 0,43;0,60 | | | |
| | VI | VII | Mo- 99 | 66,7 | h | ß 1,2 | Tc- 99m | 6,0 h | Isomerer Überg. |
| | | | | | | % 0,74;0,18 | | | الاب 0,14 لا |
| | | | Te-132 | 78 | h | ß 0,2 | J -132 | 2,4 h | ß ² ,1 |
| | | | | | | y 0,23;0,05 | | | 0,67;0,77 |
| | | | W -188 | 69 | đ | ß 0,3 | Re-188 | 16,8 h | ß ² ,1 |
| | | | | | | ٠٠٠٠. هـ | | | ₹ 0,16;0,63 |
| | VIII | VIII | Ru-103 | 39 , 5 | đ | ß-0,2;0,7 | Rh-103m | 57 m | Isomerer Überg. |
| | | | | | | y 0,5;0,61 | | | ₽ _0,040 |
| | | | Ru-106 | 1,0 | а | в ⁻ 0,04 | Rh-106 | 30 sec | ß-3,6 |
| | | | | | | kein 🥦 | | | ₩ 0,51;0,62 |
| | | | Pd-103 | 17 | đ | K-Einfang | Rh-103m | 5 7 m | Isomerer Überg. |
| | | | | | | y 0,053 | | | % 0,040 |
| | | | | | | | | | |

Tabelle 3: Übersicht über die Vor- und Nachteile interessierender Radionuklide

| Nuklid | Anwendungsgebiete | Vorteile | Nachteile |
|---------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------|
| Sr-87m | Knochen-, Lungen-, Leber-, Placenta-Szintigraphie | geringe Strahlen- belastung, wieder- holte Messungen, keine ß -Strahlung | Innere Konver- sion, keine ß - Strahlung |
| In-113m | Blutpooluntersuchungen, Radiokardiographie, Placenta- u. Myeloszintigraphie, Lungen-, Leber-, Nieren- Szintigraphie (Hirnszinti- graphie) | Lange Halbwertzeit des Mutternuklids, wiederholte Mes- sungen, keine ß - Strahlung | z. Teil sind zusätzliche Umsetzungen notwendig |
| Ga-68 | Hirn-, Knochen-Szinti- graphie, Blutpoolunter- suchungen | Lange Halbwertzeit des Mutternuklids, Positroniumscanning | kurze Halbwert- zeit der Toch- ter, hoher Preis |
| Tc-99m | Hirn-, Schilddrüsen-, Nieren-, Leber-, Milz-, Knochenmark-, Lungen-, Placenta-Szintigraphie, Blutpooluntersuchungen | günstige & -Energie, keine ßStrahlung, geringe Konversion, niedrige Strahlen- belastung | kurze Halbwert- zeit des Mut- ternuklids |
| Re-188 | Leber-, Lungen-, Gehirn-, Schilddrüsen-Szinti- graphie | lange Halbwertzeit des Mutternuklids | ß-Strahlung, hoher Preis |
| I-132 | Schilddrüsen-Szinti- graphie, Placenta- graphie, Bestimmung des Plasmavolumens | geringe Strahlenbe- lastung, wiederholte Messungen | Hohe & -Energie ß -Strahlung |

Tabelle 4: Übersicht über handelsübliche Sr-87m-Generatoren

| Firma | Beladung (mCi) | radiochemische Reinheit des Tochternuklids (Dekontamina- tionsfaktor) | Typ des Genera- tors | technische Ausführung |
|-----------------------------------------------|-------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|----------------------------|----------------------------------------|
| New England Nuclear Corp., Boston, Mass., USA | 5 - 1 0 | 10 ⁶ - 10 ⁷ | I | Säule mit Luer-Ansatz |
| Philips-Duphar, Petten, Holland | 5 - 50 | 10 ⁵ - 10 ⁶ | II | sterile Aus- führung mit Zubehör |
| Radiochemical Centre, Amersham, England | 5 - 10 | 10 ⁵ - 10 ⁶ | II | Säule mit Luer-Ansatz |

Tabelle 5: Übersicht über handelsübliche In-113m-Generatoren

| Firma | Beladung (mCi) | radiochemische Reinheit des Tochternuklids (Dekontamina- tionsfaktor) | technische Ausführung |
|-------------------------------------------------------------|-------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------|
| New England Nuclear Corp., Boston, Mass., USA | 1 - 25 | 10 ⁵ | sterile Aus- führung mit Zubehör |
| Radiochemical Centre Amersham, England | 5 - 25 | 10 ⁴ | e i nfache Säule |
| Philips-Duphar, Petten, Holland | | | sterile Aus- führung mit Zubehör |
| Byk-Mallinckrodt 6 Frankfurt/Main Gutleutstr. 169/171 | 10 - 50 | | sterile Aus- führung mit Zubehör |
| CEA-CEN-SORIN - Vertr.: Mauler - Nukleonik 565 Solingen 1 | | | sterile Aus- führung mit Zubehör |

Tabelle 6: Übersicht über handelsübliche Ga-68-Generatoren

| Firma | Beladung (mCi) | technische Ausführung |
|----------------------------------------------|-------------------|--------------------------|
| New England Nuclear Corp-, Boston, Mass. USA | 0,1 - 2 | Säule mit Luer-Ansatz |
| Radiochemical Centre, Amersham, England | 1 | einfache Säule |

Tabelle 7: Übersicht über handelsübliche Tc-99m-Generatoren

| Firma | Beladung (mCi) | technische Ausführung |
|--------------------------------------------------------------|-------------------|----------------------------------|
| CEA-CEN-SORIN Vertr.: Mauler-Nukleonik 565 Solingen 2 | bis 200 | sterile Anordnung mit Zubehör |
| Philips-Duphar Petten, Holland | 10 - 1000 | sterile Anordnung mit Zubehör |
| New England, Nuclear Corp., Boston, Mass. USA | 50 - 300 | sterile Anordnung mit Zubehör |
| Radiochemical Centre, Amersham, England | 25 - 200 | Säule mit Luer- Ansatz |
| Farbwerke Hoechst 6 Frankfurt/Main | | sterile Anordnung mit Zubehör |
| Byk-Mallinckrodt 6 Frankfurt/Main Gutleutstraße 169/71 | 50 - 300 | |

Tabelle 8: Übersicht über die Melkoperationen am J-132-Generator

| Nr.der Melk- | Alter des Generators | seit der voran- gegangenen Melk- | abgemolkene den Nuk | Impulsrate an | J-131-Gehalt des Eluats in Prozen- |
|-----------------|-------------------------|-----------------------------------------------|------------------------|-----------------------|---------------------------------------|
| opera- tion | in Stunden | operation ver- flossene Zeit in Stunden | J-132 | J-131 | ten des J-132- Gehaltes |
| 1 | 7 | - | 1,5 . 1010 | 9,3.10 ⁷ | 0,6 |
| 2 | 22 | 15,0 | 1,3 · 10 ¹⁰ | 2,5 . 10 ⁷ | 0,2 |
| 3 | 67,5 | 45,5 | 8,0 . 109 | 4,1 . 10 ⁷ | 0,5 |
| 4 | 77,5 | 10,0 | 5,5 · 10 ⁹ | 7,8.106 | 0,1 |
| 5 | 91,5 | 14,0 | 5,0 . 10 ⁹ | 4,5 . 10 ⁷ | 0,9 |
| 6 | 105,5 | 14,0 | 4,2.109 | 6,8.106 | 0,2 |
| 7 | 125,5 | 20,0 | 5,2 . 10 ⁹ | 3,0 . 10 ⁶ | 0,6 |
| 8 | 139,5 | 14,0 | 4,0 . 109 | 6,1.10 ⁶ | 0,2 |
| 9 | 149,5 | 10,0 | 3,0 · 10 ⁹ | 5,4 . 10 ⁶ | 0,2 |
| 10 | 163,5 | 14,0 | 6,4 · 10 ⁹ | 4,6.106 | 0,07 |
| 11 | 187,5 | 16,0 | 2,7 · 10 ⁹ | 4,8.106 | 0,02 |
| 12 | 259,5 | 72,0 | 1,4 . 109 | 6,1.10 ⁶ | 0,4 |
| 13 | 269 , 5 | 10,0 | 1,1 . 109 | 1,2 . 10 ⁶ | 0,1 |
| 14 | 283,5 | 14,0 | 1,0 . 109 | 1,1 . 10 ⁶ | 0,1 |
| 25 | 293,5 | 10,0 | 8,6 . 108 | 2,7 . 10 ⁵ | 0,03 |
| 26 | 307,5 | 14,0 | 8,4 . 108 | 2,7 . 10 ⁵ | 0,03 |
| 27 | 317,5 | 10,0 | 7,0 . 108 | 1,8 . 10 ⁵ | 0,03 |
| 28 | 331,5 | 14,0 | 6,4 . 108 | 2,8 . 10 ⁵ | 0,04 |
| 29 | 429,5 | 98,0 | 2,8.108 | 2,1 . 10 ⁵ | 0,08 |

| Nr. | Alter (d) | Opera- tion | Zeit | Gesamt- zahl d. Opera- tionen | Eluierte Aktivität (Ipm) | Rest- Aktivität (Ipm) (Y-87) | Dekontamina- tionsfaktor | Verunreini- gung (Y-88) | Y-88/Sr-87m |
|-----|--------------|----------------|------|----------------------------------------|--------------------------------|---------------------------------------|-----------------------------|-------------------------------|--------------------|
| 1 | 1 | Melken | 11 | 1 | 2,4 · 10 ⁹ | 1,8 · 10 ³ | 1,00 . 10 ⁶ | 200 | 1,10-7 |
| 2 | | 11 | 10 | 2 | 1,9 · 10 ⁹ | 7,2 . 10 ² | 3,00 . 10 ⁶ | 65 | 5.10 ⁻⁸ |
| 3 | 2 | 11 | 10 | 3 | 2,4 . 10 ⁹ | 5,5 · 10 ² | 4,00 . 10 ⁶ | 60 | 3.10 ⁻⁸ |
| 4 | | 11 | 10 | 4 | 1,8 . 10 ⁹ | 6,0 . 10 ² | 3,00 · 10 ⁶ | 80 | 5.10-8 |
| 5 | | 11 | 10 | 5 | 1,8 . 10 ⁹ | 5,0 . 10 ² | 3,00 · 10 ⁶ | 60 | 3.10-8 |
| 6 | 3 | 11 | 11 | 6 | 1,9 · 10 ⁹ | 3,5 · 10 ² | 5,00 · 10 ⁶ | 50 | 3.10 ⁻⁸ |
| 7 | | 11 | 10 | 7 | 1,4 · 10 ⁹ | 2,6 . 10 ² | 5,00 . 10 ⁶ | 40 | 7.10-8 |
| 8 | | 11 | 11 | 8 | 1,0 . 10 ⁹ | 1,6 . 10 ² | 7,00 . 10 ⁶ | 25 | 5,10 ⁻⁸ |
| 9 | 6 | | 11 | 9 | 1,1 . 10 ⁹ | 1,8 . 10 ² | 1,00 . 10 ⁷ | 45 | 9,10 ⁻⁸ |
| 10 | | 11 | 11 | 10 | 5,4 · 10 ⁸ | 3,0 . 10 ² | 2,00 . 10 ⁶ | 80 | 2,10 ⁻⁷ |
| 11 | | 11 | 11 | 11 | 5,2 . 10 ⁸ | 1,5 . 10 ² | 3,00 . 10 ⁶ | 40 | 1,10 ⁻⁷ |
| 12 | 7 | 11 | 11 | 12 | 6,0 . 10 ⁸ | 2,0 . 10 ² | 3,00 . 10 ⁶ | 60 | 1,10 ⁻⁷ |
| 13 | | 11 | 11 | 13 | 4,2.10 ⁸ | 2,4 . 10 ² | 2,00 . 10 ⁶ | 70 | 2,10 ⁻⁷ |
| 14 | | 77 | 11 | 14 | 3,7 . 10 ⁸ | 3,6 . 10 ² | 1,00 . 10 ⁶ | 120 | 3,10 ⁻⁷ |
| 15 | 8 | TT | 11 | 15 | 4,4 . 108 | 5,0 . 10 ² | 8,00 . 10 ⁵ | 170 | 4,10 ⁻⁷ |
| 16 | | tt | 11 | 16 | 2,9 . 10° | 3,0 . 10 ² | 1,00 . 10 ⁶ | 100 | 2,10 ⁻⁷ |
| 17 | | Ħ | 10 | 17 | 3,0 . 10 ⁸ | 3,2 . 10 ² | 9,00 · 10 ⁵ | 120 | 4,10 ⁻⁷ |
| 18 | 9 | tt | 11 | 18 | 3,0 . 10 ⁸ | 6,2 . 10 ² | 5,00 . 10 ⁵ | 260 | 9,10 ⁻⁷ |
| 19 | | 11 | 11 | 19 | 2,3.108 | 4,6 . 10 ² | 5,00 . 10 ⁵ | 150 | 6,10 ⁻⁷ |
| 20 | | 11 | 11 | 20 | 2,3 . 10 ⁸ | 3,7 · 10 ² | 6,00 · 10 ⁵ | 150 | 5,10 ⁻⁷ |

Fortsetzung von Tabelle 9:

| 21 | 10 | Melken | 11 | 21 | 2,7 . 10 ⁸ | 4,8 . 10 ² | 6,00 . 10 ⁵ | 200 | 7,10 ⁻⁷ |
|----|----|--------|------------|------------|-----------------------|-----------------------|------------------------|-----|--------------------|
| 22 | | 11 | 11 | 22 | 2,3.10 ⁸ | 2,9 . 10 ² | 8,00 . 10 ⁵ | 180 | 8,10-7 |
| 23 | | 11 | 11 | 23 | 1,6 . 10 ⁸ | 3,0 . 10 ² | 6,00 . 10 ⁵ | 200 | 1,10 ⁻⁶ |
| 24 | 13 | 11 | 12 | 24 | 1,7.108 | 3,6 . 10 ² | 5,10 . 10 ⁵ | 350 | 2,10 ⁻⁶ |
| 25 | Ì | 11 | 12 | 25 | 8,6.10 ⁷ | 2,7 . 10 ² | 3,00 . 10 ⁵ | 250 | 3,10 ⁻⁶ |
| 26 | | " | 12 | 26 | 1,0 . 108 | 3,2 . 10 ² | 3,00 . 10 ⁵ | 300 | 3,10 ⁻⁶ |
| 27 | 14 | 11 | 14 | 27 | 1,1 . 108 | 1,6 . 10 ² | 7,00 . 10 ⁵ | 200 | 2,10-6 |
| 28 | | 11 | 13 | 28 | 8,0 . 10 ⁷ | 2,5 . 10 ² | 3,00 . 10 ⁵ | 380 | 5,10 ⁻⁶ |
| 29 | 1 | 11 | 14 | 29 | 6,0 . 10 ⁷ | 400 | 2,10 . 10 ⁵ | 360 | 6,10 ⁻⁶ |
| 30 | 15 | 11 | 15 | 30 | 7,1 . 10 ⁷ | 160 | 4,00 . 10 ⁵ | 160 | 2,10 ⁻⁶ |
| 31 | | 11 | 15 | 31 | 6,3 · 10 ⁷ | 100 | 6,00 . 10 ⁵ | 100 | 2,10-6 |
| 32 | ļ | 11 | 23 | 32 | 5,5 · 10 ⁷ | 100 | 6,00 . 10 ⁵ | 100 | 2,10 ⁻⁶ |
| 33 | 17 | 11 | 24 | 33 | 5,9 . 10 ⁷ | 65 | 9,00 . 10 ⁵ | 80 | 1,10 ⁻⁶ |
| 34 | | 11 | 40 | 34 | 3,9 . 10 ⁷ | 40 | 1,00 . 10 ⁶ | 60 | 1,10-6 |
| 35 | 20 | " | 96 | 35 | 2,4 . 10 ⁷ | 45 | 5,00 . 10 ⁵ | 90 | 4,10-6 |
| 36 | 21 | " | 3 9 | 36 | 1,8.10 ⁷ | 30 | 6,00 . 10 ⁵ | 80 | $4,10^{-6}$ |
| 37 | } | 11 | 45 | 37 | 1,2 . 10 ⁷ | 30 | 4,00 . 10 ⁵ | 80 | 7,10 ⁻⁶ |
| 38 | 22 | 11 | 3 9 | 38 | 1,3 · 10 ⁷ | 20 | 6,00 . 10 ⁵ | 60 | 5,10 ⁻⁶ |
| 39 | | 11 | 43 | 3 9 | 1,0 . 10 ⁷ | 20 | 5,00 . 10 ⁵ | 55 | 6,10 ⁻⁶ |
| 40 | | 11 | 75 | 40 | 9,0 . 106 | 15 | 6,00 · 10 ⁵ | 40 | 4,10 ⁻⁶ |
| 41 | | 11 | 85 | 41 | 7,4 · 10 ⁶ | 5 | 1,00 . 10 ⁶ | 15 | 2,10 ⁻⁶ |

Fortsetzung von Tabelle 9:

| | 7 | T | 1 | T | | | | l | <u> </u> |
|-------------|----|----------------|------------|----|-----------------------|----|------------------------|------------|--------------------|
| 42 | 24 | Melken | 160 | 42 | 5,5 . 10 ⁶ | 5 | 1,00 . 10 ⁶ | 1 5 | 3,10-6 |
| 43 | 29 | " | 44 | 43 | 3,4 · 10 ⁶ | 15 | 7,00 . 10 ⁵ | 60 | 2,10 ⁻⁵ |
| 44 | | 11 | 30 | 44 | 2,6 . 10 ⁶ | 5 | 5,00 . 10 ⁵ | 30 | 1,10 ⁻⁵ |
| 45 | 30 | 11 | 40 | 45 | 2,4 . 10 ⁶ | 3 | 8,00 . 10 ⁵ | 30 | 1,10 ⁻⁵ |
| 46 | | 11 | 7 5 | 46 | 2,4 . 10 ⁶ | 2 | 1,00 . 10 ⁶ | 10 | 4,10-6 |
| 47 | 31 | 11 | 85 | 47 | 1,6 . 10 ⁶ | 2 | 8,00 . 10 ⁵ | 10 | 4,10-6 |
| 48 | | " | 110 | 48 | 1,1 . 10 ⁶ | 2 | 5,00 . 10 ⁵ | 10 | 9,10 ⁻⁶ |
| 49 | 34 | 11 | 128 | 49 | 9,3 · 10 ⁵ | 2 | 5,00 . 10 ⁵ | 30 | 3,10 ⁻⁵ |
| 50 | 35 | †† | 62 | 50 | 7,5 . 10 ⁵ | 1 | 7,00 . 10 ⁵ | 15 | 2,10 ⁻⁵ |
| 51 | 35 | Durch- fluß | - | 66 | _ | _ | - | - | - |
| 52 | 36 | Melken | 103 | 67 | 7,2 . 10 ⁵ | 2 | 4,00 . 10 ⁵ | 50 | 7,10 ⁻⁵ |
| 53 | 42 | 11 | 435 | 68 | 2,8.104 | 1 | 1,00 . 104 | 25 | 8,10-4 |
| L | J | <u> </u> | J | L | L | L | <u> </u> | <u> </u> | l |

Tabelle 10: Übersicht über die Melkoperationen am Sr-87m-Generator

| Nr. der Melkopera- tion | Alter des Generators (d) | Durchfluß- geschwin- digkeit (ml/min) | Gesamtaktivität (| Y-87 (Ipm) zur t = 0 | Y-88 (Ipm) zur t = 0 | DF Sr-87m/Y-87 |
|-------------------------------|--------------------------------|------------------------------------------------|------------------------|----------------------------|----------------------------|-----------------------|
| 1 | 1 | 3,7 | 5,4 · 10 ¹⁰ | 2,1 . 10 ⁵ | 1,2 . 10 4 | 2,5 . 105 |
| 2 | 2 | 1,0 | 4,0.109 | 7,4 . 104 | 2,3.10 ³ | 5,4 . 10 4 |
| 3 | 3 | 10,0 | 2,1 · 10 ⁹ | 3,7 . 104 | 1,3.10 ³ | 1,2 . 10 ⁵ |
| 5 - 34 | 3 | 5 , 0 | | | | |
| 35 | 4 | 5 , 2 | 2,0.109 | 2,3.104 | 8,8 . 10 ² | 8,7.104 |
| 36 | 5 | 1,0 | 2,1.109 | 1,15. 104 | 5,8 . 10 ² | 1,8 . 10 ⁵ |
| 37 | 7 | 5 , 3 | 9,7.108 | 5,0 · 10 ⁴ | 3,1 · 10 ³ | 1,9 . 104 |
| 38 | 8 | 1,3 | 7,4 . 108 | 7,4.104 | 5,2 . 10 ³ | 1,0 . 104 |
| 39 | 9 | - | 7,5 . 108 | 7,4 . 104 | 8,84. 10 ³ | 1,0 . 104 |
| 40 | 10 | 1,7 | 7,4 . 108 | 7,2.104 | $7,5.10^3$ | 1,0 . 104 |
| 42 | 11 | 2,0 | 5,6 . 10 ⁸ | 2,8.104 | 3,58. 10 ³ | 2,0.104 |
| 43 | 12 | 1,7 | 5,0 . 10 ⁸ | 2,5 . 104 | 4,1.10 ³ | 2,0.104 |
| 44 - 49 | 12 | 0,2 | | | | |
| 50 | 14 | 0,4 | 3,6 . 108 | $7,2.10^3$ | 1,71. 10 ³ | 5,0 . 10 ⁴ |
| 51 | 1 5 | 5,4 | 2,0 . 108 | 3,4 . 10 4 | $8,16.10^{3}$ | 5,9 · 10 ³ |
| 52 | 16 | 5 , 0 | 1,2 . 108 | 2,6.104 | 6,2.10 ³ | 5,0 . 10 ³ |
| 54 | 17 | 2,5 | 9,0 . 10 ⁷ | 1,05. 10 ⁵ | 2,48. 104 | 8,6 . 10 ² |
| 55 | 18 | 2,5 | 7,7 . 10 ⁷ | 1,05. 10 ⁵ | 2,48. 104 | 7,3 · 10 ² |

Tabelle 11: Übersicht über die Meßergebnisse am Sr-87m-Generator

| Nr. der Melk- operation | Nr. der Fraktion | eluierte Sr-87m- Aktivität (%) | Dekontaminationsfaktor |
|-------------------------------|---------------------|-----------------------------------------|------------------------|
| 4 | 1 | 72,40 | 5,3 · 10 ⁴ |
| | 2 | 22,62 | 6,8.104 |
| | 3 | 3,53 | 5,1 · 10 ⁴ |
| | 4 | 1,45 | 2,4 . 10 ⁴ |
| 41 | 1 | 46,24 | 7,6 . 10 ³ |
| | 2 | 39,31 | 1,7 . 104 |
| | 3 | 7,51 | 3,0 . 10 ⁴ |
| | 4 | 6,94 | 4,1 . 104 |
| 53 | 1 | 40,52 | 3,8 . 10 ³ |
| | 2 | 40,52 | 6,9 . 10 ³ |
| | 3 | 11,11 | 4,7 . 10 ³ |
| | 4 | 7,84 | 4,4 · 10 ³ |

Tabelle 12: Übersicht über die Melkoperationen am Tc-99m-Generator

| Elution Nr. | Alter des Generators in Tagen | Durchfluß- geschwindig- keit (ml/min) | Impulsrate an Tc-99m im Eluat (Ipm) | Restimpulsrate (Ipm) | Dekontaminations- faktor |
|-----------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 1 2 3 4 5 16 17 18 19 30 31 32 60 61 62 73 | 0 1 2 3 6 7 8 9 10 13 14 15 29 30 31 34 | 0,8 1,0 1,0 0,7 0,8 0,7 0,7 0,7 0,7 2,0 2,0 2,0 1,4 0,4 0,5 0,5 0,5 0,4 | 3,5 . 10 ¹⁰ 2,5 . 10 ¹⁰ 2,0 . 10 ¹⁰ 1,6 . 10 ¹⁰ 1,6 . 10 ¹⁰ 7,0 . 10 ⁹ 7,0 . 10 ⁹ 4,5 . 10 ⁹ 2,9 . 10 ⁹ 1,2 . 10 ⁹ 8,1 . 10 ⁸ 5,3 . 10 ⁸ 2,5 . 10 ⁷ 2,4 . 10 ⁷ 1,1 . 10 ⁷ 7,2 . 10 ⁶ | $6,0 . 10^{3}$ $1,1 . 10^{4}$ $1,1 . 10^{4}$ $9,0 . 10^{3}$ $1,3 . 10^{4}$ $2,0 . 10^{3}$ $1,5 . 10^{3}$ $1,1 . 10^{3}$ $1,2 . 10^{3}$ $1,2 . 10^{3}$ $5,0 . 10^{2}$ $5,0 . 10^{2}$ $1,0 . 10^{2}$ $1,0 . 10^{2}$ $1,0 . 10^{2}$ $1,0 . 10^{2}$ $1,0 . 10^{2}$ | $5,8 \cdot 10^{6}$ $2,3 \cdot 10^{6}$ $1,8 \cdot 10^{6}$ $1,8 \cdot 10^{6}$ $1,8 \cdot 10^{6}$ $1,2 \cdot 10^{6}$ $1,2 \cdot 10^{6}$ $1,4 \cdot 10^{6}$ $1,6 \cdot 10^{6}$ $1,6 \cdot 10^{6}$ $1,6 \cdot 10^{6}$ $1,1 \cdot 10^{6}$ $1,1 \cdot 10^{5}$ |
| 74 75 | 35 36 | 0,4 0,4 | 5,9 . 10 ⁶ 3,9 . 10 ⁶ | $\leq 1,0 \cdot 10^2$ $\leq 1,0 \cdot 10^2$ | $\geq 5,9 \cdot 10^4$ $\geq 3,9 \cdot 10^4$ |

Fortsetzung Tabelle 12:

| 76 | 37 | 0,4 | 2,0 . 10 ⁶ | ≤ 50 | ≥4,0 . 10 ⁴ |
|----|----|-----|-----------------------|-------------|------------------------------|
| 77 | 38 | 0,4 | 2,1 . 10 ⁶ | ≤ 50 | $=4,2.10^4$ |
| 78 | 41 | 0,3 | 8,7 . 10 ⁵ | ≤ 50 | $\geq 1,7.10^4$ |
| 89 | 42 | 0,3 | 6,2 . 10 ⁵ | ≤ 50 | \geq 1,2 . 10 ⁴ |
| 90 | 43 | 0,3 | 5,2 . 10 ⁵ | ≤ 50 | ≥ 1,0 . 10 ⁴ |
| 91 | 44 | 0,3 | 3,2 . 10 ⁵ | ≤ 50 | $\geq 6,4.10^3$ |
| 92 | 45 | 0,3 | 3,6 . 10 ⁵ | ≤ 50 | $\geq 7,2.10^3$ |
| 93 | 48 | 0,3 | 1,6 . 10 ⁵ | ≤ 50 | \geq 3,2 . 10 ³ |
| 94 | 49 | 0,3 | 1,2 . 10 ⁵ | <u>←</u> 50 | $\geq 2,4 \cdot 10^3$ |

80

Tc-99m-Im-Nr. der Alter des Durchfluß-Restaktivität Dekontaminageschwindig-Melkope-Generators pulsrate im tionsfaktor (Ipm) Eluat ration (d) keit (ml/min) (Ipm) 6,5.104 2,6 . 10¹⁰ 1,0 . 10³ 23 1 1 2,2.10¹⁰ 3,5 · 10⁴ 6,3.10⁵ 27 2 2 2,2.10¹⁰ 3,0 · 10⁴ 7,3 · 10⁵ 3 2,5 3 1,2 . 10¹⁰ 1,0 . 10⁶ $6,0.10^{3}$ 5 27 8,7 . 10⁹ 1,7.106 $2,5.10^3$ 6 27 1,2.106 6,0 · 10⁹ 5,0 · 10³ 47 27 6,0 · 10⁹ 1,2 · 10⁶ 5,0 · 10³ 48 8 3 3,3 · 10⁹ $4,4.10^{3}$ $7,6.10^{5}$ 49 2,5 9 2,5 · 10⁹ $6,3.10^{5}$ $4,0.10^{3}$ 2,2 51 10 2,4 · 10⁹ 4,0 . 10³ 6,0 · 10⁵ 52 3,0 11 1,5 · 10⁹ $4,0.10^{3}$ 3,8 · 10⁵ 53 12 2,2 7,4 . 10⁸ 5,3 · 10⁵ $1,4.10^{3}$ 95 14 3,0 8,1.108 $1,5.10^3$ 5,4 · 10⁵ 96 15 3,0 8,8 . 10⁸ 4,4 · 10⁵ 1,9 · 10² 16 97 2,5 4,2.108 2,9 · 10² 1,5 . 10⁶ 179 2,4 17 3,5 · 10⁸ 9,0 · 10⁵ $3,9 \cdot 10^2$ 180 18 2,3

Tabelle 13:

Übersicht über die Melkoperationen am Tc-99m-Generator

Tabelle 14: Übersicht über die Meßergebnisse am Tc-99m-Generator

| Nr. der Melkoperation | Nr. der Fraktion | eluierte Tc-99m-Aktivität (%) | Dekontaminations- faktoren |
|--------------------------|-----------------------|----------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 3 | 1 2 3 4 5 | 1,98 85,34 10,78 1,21 0,67 | 5,5 . 10 ⁴ 1,8 . 10 ⁶ 2,1 . 10 ⁵ 2,3 . 10 ⁴ 1,5 . 10 ⁴ |
| 49 | 1 2 3 4 5 | 5,20 77,94 12,99 2,89 0,98 | 1,2 . 10 ⁵ 1,8 . 10 ⁶ 3,2 . 10 ⁵ 7,1 . 10 ⁴ 2,6 . 10 ⁴ |
| 97 | 1 2 3 4 5 | 7,70 89,84 2,14 0,21 0,11 | 4,2.10 ⁶ 1,4.10 ⁸ 1,4.10 ⁶ 1,4.10 ⁵ 5,8.10 ⁴ |

Tabelle 15: Überprüfung des Y-90-Generators nach Doering, Tucker und Stang (1)

| | 7 | | | T | | | T | } |
|----------------|--------------------------------------|--------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|--------------------|---------------------------------|-----------------|---------------------------------|-----------------------------|
| Versuch Nr. | Alter des Gene- ra- tors | Versuch | Zeit nach der vor- ausgehen- den Tren- nung (t/t 1/2) | Impulsra Ipm/ml | te im Eluat Ipm in 150 ml | Ausbeute (%) | Aktivität an Sr-90 Ipm/ml | Dekontamina- tionsfaktor |
| 1 | 6 | Aktivitäts- verteilung | 1,77 | 188 000 | 2,82 . 10 ⁷ | 4,7 | - | - |
| 2 | 7 | Melken (150 ml) | 0,37 | 182 500 | 2,5 . 10 ⁷ | 3,7 | 2,3 | 8.104 |
| 3 | | Durchfluß von 15 l Citratlsg. | - | - | | - | - | - |
| 4 | 25 | Melken (150 ml) | 1,36 | 82 200 | 1,24 . 10 ⁷ | - | n i cht messbar | > 10 ⁵ |
| 5 | 26 | Aktivitäts- verteilung | 0,37 | 158 000 | 2,37 · 10 ⁷ | 3 , 2 | - | - |
| 6 | _ | Durchfluß von 151 l Citratlsg. | - | - | · - | - | - | - |
| 7 | 33 | Melken (150 ml) | 0,023 | 58 500 | 8,77 . 10 ⁶ | - | nicht messbar | > 10 ⁵ |
| 8 | 34 | Aktivitäts- verteilung | 0,37 | 83 700 | 1,25 . 10 ⁷ | - | - | - |
| 9 | 48 | Melken (150 ml) | 5,15 | | 2,31 . 10 ⁷ | 3,12 | nicht messbar | > 10 ⁵ |
| 10 | 50 | Melken (150 ml) | 0,71 | 133 000 | 1,99 . 10 ⁷ | 2,75 | nicht messbar | |

| 11- 12 | 53 | Melken (2x150 ml) | 1,15 | 182 000 229 000 | 2,73 . 10 ⁷ 3,44 . 10 ⁷ | 3,8 4,77 | nicht messbar | > 10 ⁵ |
|-----------|-----|---------------------------------------------------|------|------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------|----------------|------------------------|-----------------------------|
| 13- 16 | 54 | Melken (4x150 ml) | 0,35 | 169 000 199 000 157 000 115 000 | $2,53 \cdot 10^{7}$ $2,98 \cdot 10^{7}$ $2,35 \cdot 10^{7}$ $1,73 \cdot 10^{7}$ | 3,78 - - | nicht messbar | >10 ⁵ |
| 17- | 55 | Melken (2x150 ml) | 0,37 | 170 700 145 200 | 2,56 . 10 ⁷ 2,18 . 10 ⁷ | 4,2 - | nicht messbar | >10 ⁵ |
| 19- 20 | 70 | Melken (2x150 ml) Aktivitäts- verteilung | 2,14 | 185 760 184 950 | 2,78 . 10 ⁷ 2,77 . 10 ⁷ | 3,85 - | 4 , 4 - | 2.10 ⁴ - |
| 21 | 155 | Melken (150 ml) pH-Messung | 31,7 | - | | - | - | _ |
| 22 | 270 | Aktivitäts- verteilung pH-Messung | 42,6 | 863 000 | 1,29 . 10 ⁷ | 1,65 | 20 Ipm/ml in Fr. Nr. 5 | 1,3.10 ⁴ |

Tabelle 16: Übersicht über die Melkoperationen im System Cs-137/Ba-137m

| Nr. der Melk- operation | Alter des Generators (Tage) | Eluierte Aktivität an Ba-137m (Ipm) | Ausbeute % | Restakti- vität an Cs-137 im Eluat (Ipm) | Dekontaminations- faktor |
|----------------------------|-----------------------------------|----------------------------------------|---------------|------------------------------------------------------|-----------------------------|
| 1 | 1 | 9,41 . 10 ⁶ | 52,6 | 52 | 1,82 . 10 ⁵ |
| 2 | 2 | 9,15 . 10 ⁶ | 51,1 | 26 | 3,54 · 10 ⁵ |
| 3 | 5 | 1,16 . 10 ⁷ | 66,0 | 8 | 1,45 . 10 ⁶ |
| 4-5 (4 ml Eluat) | 5 | 5,97 · 10 ⁶ | 30,5 | 14 | 4,28 . 10 ⁵ |
| 6 | 6 | 7,60 . 10 ⁶ | 42,2 | 11 | 6,88 . 10 ⁵ |
| 10 | 6 | 1,12 . 10 ⁷ | 61,5 | 11 | 1,02 . 10 ⁶ |
| 14 | 7 | 9,98 . 10 ⁶ | 55 , 5 | 11 | 9,06 · 10 ⁵ |
| 44 | 9 | 1,13 . 10 ⁷ | 70,0 | 6,7 | 1,68 . 10 ⁶ |
| 45 | 14 | 1,11 . 10 ⁷ | 61,6 | 145 | 7,62 . 10 ⁴ |
| 49 | 14 | 1,29 . 10 ⁷ | 71,6 | 347 | 3,73 · 10 ⁴ |
| 53 | 14 | 1,26 . 10 ⁷ | 70,0 | 364 | 3,56 · 10 ⁴ |
| 82 | 1 5 | $1,33.10^{7}$ | 74,0 | 955 | 1,37 . 104 |
| 83 | 16 | $1,32.10^{7}$ | 73,3 | 1060 | 1,22 . 10 ⁴ |
| 109 | 20 | 8,28 . 10 ⁶ | 46,2 | 3320 | 2,49 · 10 ³ |
| 110 | 20 | 1,44 . 107 | 81,0 | 3780 | 3,83 · 10 ³ |
| 111 | 20 | 1,41 . 10 ⁷ | 76,3 | 3930 | 3,58 · 10 ³ |
| 112 | 21 | 1,41 . 10 ⁷ | 76,3 | 5170 | 2,73 · 10 ³ |
| 213 | 23 | 1,10 . 10 ⁷ | 62,0 | 11990 | 9,13 · 10 ² |

C

| Probe Nr. | Eluierte Gesamt- aktivität an In-115m (Ipm) | Ausbeute an In (%) | Eluierte Ge- samtaktivi- tät an Cd-115 (Ipm) | Dekontaminations- faktor |
|--------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------|-------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 1 2 3 4 5 6 7 8 | 20,5 . 10 ⁶ 15,0 . 10 ⁶ 11,0 . 10 ⁶ 7,80 . 10 ⁶ 5,75 . 10 ⁶ 4,25 . 10 ⁶ 3,30 . 10 ⁶ 2,35 . 10 ⁶ | 102 100 101 102 99,5 100 99 | 710 170 700 420 760 1130 1005 | 2,89 . 10 ⁴ 8,84 . 10 ⁴ 1,57 . 10 ⁴ 1,86 . 10 ⁴ 7,57 . 10 ³ 3,77 . 10 ³ 3,29 . 10 ³ 2,85 . 10 ³ |
| 9 10 | 1,69 . 10 ⁶ 1,36 . 10 ⁶ | 103 95 | 775 875 | 2,18 . 10 ³ 1,55 . 10 ³ |

Tabelle 18: Übersicht über die Melkoperationen am La-140-Generator

| Nr. | Versuch | Elutions- mittel (Molarität an Milch- säure) | Zahl der vor- aus- ge- gan- genen Melk- opera- tionen | Impulsrate im Eluat (Ipm) | Aus- beute % | Rest- aktivi- tät im Eluat (Ipm) | Dekontamina- tionsfaktor |
|-----|------------------------------------|----------------------------------------------|-------------------------------------------------------|---------------------------------|--------------------|----------------------------------------------|-----------------------------|
| 1 | Aktivitätsver- teilung im Eluat | 0,5 | 0 | 4,57 · 10 ⁵ | 6 | - | |
| 2 | " | 1,0 | 1 | 4,44 . 10 ⁶ | 69 | - | _ |
| 3 | Durchfluß (1000 ml) | 11 | 2 | - | - | - | - |
| 4 | Melken (200 ml) | 11 | 7 | 2,10 . 10 ⁶ | 60 | 35 | 6.104 |
| 5 | " | 11 | 8 | 1,31 · 10 ⁶ | 51 | 21 | 6.104 |
| 6 | " | 11 | 9 | 1,30 . 10 ⁶ | 56 | 14 | 9.104 |
| 7 | Durchfluß (1000 ml) | 11 | 10 | - | _ | _ | _ |
| 8 | Melken (200 ml) | " | 15 | 1,53 · 10 ⁶ | - | 31 | 5.104 |
| 9 | " | 11 | 16 | 2,06 . 10 ⁶ | 77 | 54 | 4 . 104 |
| 10 | " | 11 | 17 | 0,91 . 10 ⁶ | 60 | 23 | 4 . 104 |
| 11 | Durchfluß (1000 ml) | 11 | 18 | _ | - | _ | _ |
| 12 | Melken (200 ml) | 11 | 23 | 0,61 . 106 | 5 7 | 0 | > 104 |
| 13 | " | 11 | 24 | 0,79 · 10 ⁶ | 61 | 15 | 5 · 10 ⁴ |
| 14 | " | 11 | 25 | 0,82 . 10 ⁶ | 66 | 85 | 1.104 |

Tabelle 19: Übersicht über die Melkoperationen am Generator Nr. 1

| Alter (Tage) | Nr. der Melk- operation | Elutions- mittel | Impulsrate im Eluat (Ipm) | Rest- impuls- rate (Ipm) | Dekonta- minations- faktor | Ausbeute % |
|-----------------|----------------------------|------------------------|------------------------------|-----------------------------------|----------------------------------|---------------|
| 31- 35 | 1- 8 | 10 ⁻² n HCl | 7,7 . 10 ⁷ | 180 | 4 . 10 ⁵ | 51 |
| 60- 66 | 10- 38 | 10 ⁻² n HCl | 7,5 . 10 ⁷ | 183 | 4 . 10 ⁵ | 50 |
| 84 | 66- 81 | 10 ⁻³ n HCl | 8,7 . 10 ⁷ | 44 | 2.106 | 59 |
| 104-116 | 82- 394 | 10^{-3} n HCl | 7,7 . 10 ⁷ | 34 | 2 · 10 ⁶ | 52 |
| 243-244 | 1743-1751 | 10 ⁻³ n HCl | 5,9 · 10 ⁷ | 7 | 8.106 | 40 |
| 253-257 | 2752-2760 | 10 ⁻³ n HCL | 6,7.10 ⁷ | 14 | 5 · 10 ⁶ | 45 |
| 288 | 3762-3767 | 10 ⁻³ n HCl | 6,8 . 10 ⁷ | 13 | 5 · 10 ⁶ | 46 |
| 292 | 4768-4771 | 10 ⁻³ n HCl | 6,8 . 10 ⁷ | 8 | 9 . 10 ⁶ | 46 |
| 295 | 5769-5772 | 10 ⁻³ n HCl | 6,2 . 10 ⁷ | 7 | 1.10 ⁷ | 42 |

Tabelle 20: Übersicht über die Melkoperationen am Generator Nr. 2

Nach 469 Melkoperationen wurde die Beladung des Generators von 30 µCi auf 2 mCi ¹³⁷Cs erhöht

| Alter (Tage) | Nr. der | Impulsrate | Restimpuls- | Dekonaminations- | Ausbeute |
|------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------|
| | Melkoperation | im Eluat (Ipm) | rate (Ipm) | faktor | % |
| 12 13 - 19 37 - 48 86 117 - 118 118 180 190 - 195 | 1 - 2 - 36 41 - 350 351 - 353 468 - 469 472 1742 - 1749 2751 - 2760 | 9,3 · 10 ⁶ 8,5 · 10 ⁶ 7,8 · 10 ⁶ 8,0 · 10 ⁶ 6,1 · 10 ⁶ 2,2 · 10 ⁸ 2,1 · 10 ⁸ | 3 11 3 7 7 0 240 259 | $3 \cdot 10^{6}$ $8 \cdot 10^{5}$ $3 \cdot 10^{6}$ $1 \cdot 10^{6}$ $9 \cdot 10^{5}$ $> 10^{8}$ $1 \cdot 10^{6}$ $2 \cdot 10^{6}$ | 76 69 65 69 50 43 43 |

Tabelle 21: Einfluß längerer Lagerung ohne Elution auf den Dekontaminationsfaktor

| Generator Nr. | Beladung (AuCi) | Zeit der Lagerung (Tage) | 1. | ekontaminatio bei der 2. tion nach der | 3. | 4. |
|------------------|---------------------|------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------|
| 2 1 | 30 400 2000 | 38 6 20 38 1 3 4 10 43 | 1 · 10 ⁶ 2 · 10 ⁷ 4 · 10 ⁵ 8 · 10 ⁴ 1 · 10 ⁶ 10 ⁵ 2 · 10 ⁵ 2 · 10 ⁵ 1 · 10 ⁵ | 1 . 10 ⁶ 2 . 10 ⁷ 3 . 10 ⁶ 1 . 10 ⁶ 4 . 10 ⁶ 6 . 10 ⁵ 5 . 10 ⁵ 1 . 10 ⁶ 1 . 10 ⁵ | 1 . 10 ⁶ - 10 ⁷ 2 . 10 ⁶ - 2 . 10 ⁶ 1 . 10 ⁶ 1 . 10 ⁶ 6 . 10 ⁵ | - - - - - - 2.10 ⁶ |

2

Tabelle 22: Übersicht über die Melkoperationen am Generator A - 1 (Fixierung des Pd-103 als Chlorokomplex an Dowex-2x8)

| Nr. der Melk- operation | Alter des Generators in Tagen | gemessene Impulsrate an Rh-103m im Eluat | insgesamt eluierte Impulsrate an Rh-103m | gemessene Impulsrate an Pd-103 im Eluat | Dekontamina- tionsfaktor | Ausbeute in % |
|-------------------------------|-------------------------------------|---------------------------------------------------|---------------------------------------------------|--------------------------------------------------|-----------------------------|------------------|
| 1 | 2 | 2,50 . 10 ⁶ | 1,88 . 107 | 13 | 1,9 . 10 ⁵ | 22,9 |
| 2 | 3 | 2,40 . 10 ⁶ | 1,80 . 10 ⁷ | 29 | 8,3.104 | 20,5 |
| 3 | 6 | 2,05 . 10 ⁶ | 1,54 . 10 ⁷ | 15 | 1,4 · 10 ⁵ | 19,7 |
| 14 | 7 | 2,06 . 10 ⁶ | 1,55 . 10 ⁷ | 2 | 1,0 . 10 ⁶ | 20,7 |
| 1 5 | 8 | 2,09 · 10 ⁶ | 1,57 . 10 ⁷ | 8 | 2,6 . 10 ⁵ | 21,8 |
| 16 | 9 | 2,08 . 10 ⁶ | 1,56 . 10 ⁷ | 12 | 1,7 · 10 ⁵ | 22,6 |
| 84 | 14 | 1,78 · 10 ⁶ | 1,34 . 10 ⁷ | 0 | > 10 ⁶ | 23,9 |
| 85 | 20 | 1,80 . 10 ⁶ | 1,35 . 10 ⁷ | 33 | 5,5 · 10 ⁴ | 30,7 |
| 86 | 21 | 1,40 . 10 ⁶ | 1,05 . 10 ⁷ | 20 | 7,0.104 | 24,7 |
| 154 | 27 | 9,60 . 10 ⁵ | 7,20 · 10 ⁶ | 9 | 1,1 . 10 ⁵ | 21,6 |
| 156 | 34 | 8,80 . 10 ⁵ | 6,60 . 10 ⁶ | 20 | 4,4 . 104 | 26,4 |
| 223 | 43 | 5,20 . 10 ⁵ | 3,90 · 10 ⁶ | 4 | 1,3 · 10 ⁵ | 22,3 |
| 224 | 45 | 5,00 . 10 ⁵ | $3,75 \cdot 10^6$ | 5 | 1,0 . 10 ⁵ | 23,7 |
| 225 | 49 | 4,40 . 10 ⁵ | 3,30 . 10 ⁶ | 2 | 2,2.10 ⁵ | 23,9 |
| | Mittel | wert: | | | 2,6 . 10 ⁵ | 23,2 |

Tabelle 23: Übersicht über die Melkoperationen am Generator A - 2

(Fixierung des Pd-103 als Chlorokomplex am Amberlite-IRA-93)

| Nr. der Melk- operation | Alter des Generators an Tagen | gemessene Impulsrate an Rh-103m im Eluat | insgesamt eluierte Impulsrate an Rh-103m | gemessene Impulsrate an Pd-103 im Eluat | Dekontamina- tionsfaktor | Ausbeute in % |
|-------------------------------|-------------------------------------|---------------------------------------------------|---------------------------------------------------|--------------------------------------------------|--------------------------------|------------------|
| 1 | 3 | 5,10 . 10 ⁶ | 3,80 . 10 ⁷ | 19 | 2,7 · 10 ⁵ | 21,1 |
| 2 | 4 | 5,00 . 10 ⁶ | 3,80 · 10 ⁷ | 54 | 9,2.10 ⁴ | 21,7 |
| 3 | 7 | 4,10 . 10 ⁶ | 3,10 · 10 ⁷ | 52 | 7,9 · 10 ⁴ | 19,0 |
| 14 | 8 | 4,10 . 10 ⁶ | 3,10 · 10 ⁷ | 2 | 2,0 . 10 ⁶ | 21,0 |
| 1 5 | 9 | 4,70 . 10 ⁶ | 3,50 . 10 ⁷ | 16 | 2 , 9 . 10 ⁵ | 24,8 |
| 1 6 | 10 | 4,10 · 10 ⁶ | 3,15 . 10 ⁷ | 18 | 2,3.10 ⁵ | 23,3 |
| 84 | 15 | 3,40 · 10 ⁶ | 2,55 . 10 ⁷ | 22 | 1,5 . 10 ⁵ | 23,2 |
| 85 | 21 | 2,65 . 10 ⁶ | 1,99 . 10 ⁷ | 37 | 7,2.104 | 22,9 |
| 86 | 22 | 2,14 · 10 ⁶ | 1,60 . 10 ⁷ | 43 | 5,0 . 10 ⁴ | 19,3 |
| 154 | 28 | 1,70 . 10 ⁶ | 1,30 . 10 ⁷ | 10 | 1,7 . 10 ⁵ | 20,0 |
| 155 | 31 | 2,00 . 10 ⁶ | 1,50 . 10 ⁷ | 27 | 7,4 . 104 | 25,9 |
| 1 56 | 35 | 1,49 · 10 ⁶ | 1,12 . 10 ⁷ | 26 | 5,7 . 10 ⁴ | 22,9 |
| 223 | 44 | 9 , 50 . 10 ⁵ | 7,10 . 10 ⁶ | 9 | 1,1 · 10 ⁵ | 20,9 |
| 224 | 46 | 9,00 . 10 ⁵ | 6,80 . 10 ⁶ | 4 | 2,3 · 10 ⁵ | 21,6 |
| 225 | 50 | 7,80 . 10 ⁵ | 5,90 . 10 ⁶ | 3 | 2,6 . 10 ⁵ | 21,9 |
| Mitt | elwert | : | | | 2,8 . 10 ⁵ | 22,0 |

92

Tabelle 24: Übersicht über die Melkoperationen am Generator B

(Fixierung des Pd-103 als Diacetyldioxim-Komplex auf Aluminiumoxid)

| Nr. der Melkopera- tion | Alter des Generators in Tagen | gemessene Impulsrate an Rh-103m im Eluat | insgesamt eluierte Impulsrate an Rh-103m | gemessene Impulsrate an Pd-103 im Eluat | Dekonta- mina- tions- faktor | Ausbeute in % |
|-------------------------------|-------------------------------------|---------------------------------------------------|---------------------------------------------------|--------------------------------------------------|---------------------------------------|------------------|
| 1 | 3 | 1,88 . 10 ⁵ | 1,41 . 106 | 4337 | 43 | 6,7 |
| 2 | 4 | 2,25 . 10 ⁵ | 1,69 . 10 ⁶ | 2789 | 80 | 8,5 |
| 3 | 7 | 1,78 . 10 ⁵ | 1,33 . 10 ⁶ | 2218 | 79 | 7,6 |
| 14 | 8 | 1,70 . 10 ⁵ | 1,28 . 10 ⁶ | 1768 | 95 | 7,5 |
| 15 | 9 | 1,90 . 10 ⁵ | 1,43 . 10 ⁶ | 1646 | 110 | 8,7 |
| 16 | 10 | 1,80 . 10 ⁵ | | 1376 | 130 | 8,5 |
| 84 | 1 5 | 1,45 . 10 ⁵ | | 2636 | 54 | 7,5 |
| 85 | 21 | 1,10 . 10 ⁵ | | 412 | 270 | 8,2 |
| 86 | 22 | 9,50 . 104 | 7,13 . 10 ⁵ | 456 | 210 | 7,9 |
| 154 | 28 | 5,70 · 10 ⁴ | 4,28 . 10 ⁵ | 59 17 | 13 | 5,6 |
| 156 | 35 | 5,20 · 10 ⁴ | 3,90 . 10 ⁵ | 476 | 111 | 6,7 |
| 223 | 44 | 2,90 . 10,4 | 2,18 . 10 ⁵ | 357 | 80 | 5,5 |
| 224 | 46 | 3,09 · 10 ⁴ | 2,32 · 10 ⁵ | 281 | 110 | 6,3 |
| 225 | 50 | 2,35 . 10 ⁴ | 1,76 . 10 ⁵ | 255 | 91 | 5,6 |
| Mitte | lwert | : | | | 105 | 7,1 |

Tabelle 25: Übersicht über die Melkoperationen am Kr-83m-Generator (Säule 1)

| Elution Nr. | Durchfluß- geschwin- digkeit (ml/min) | Ausbeute (%) | Dekontaminations- faktor |
|-------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------|
| 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 | 1,46 1,46 1,46 2,86 2,86 2,86 0,55 0,55 0,55 6,10 6,10 6,10 | 93,4 89,2 86,7 96,4 84,9 90,6 96,5 88,5 95,8 86,6 95,3 | $\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$ |

Tabelle 26: Übersicht über die Melkoperationen am Kr-83m-Generator (Säule 2)

| Elution Nr. | eluierte Kr-83m- Aktivität (rel.Ein- heiten) | eluierte Rb-83- Aktivität (rel. Einheiten) | Dekontaminations- faktor |
|-----------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------|
| 1 2- 66 67 68-132 133 134-198 199 200-264 265 266-330 331 | 62,32 - 70,14 - 74,10 - 68,52 - 76,96 - 62,96 | $\leq 1,7 \cdot 10^{-5}$ $\leq 1,6 \cdot 10^{-5}$ $\leq 1,6 \cdot 10^{-5}$ $\leq 1,6 \cdot 10^{-5}$ $\leq 1,7 \cdot 10^{-5}$ $\leq 1,6 \cdot 10^{-5}$ $\leq 1,9 \cdot 10^{-5}$ | |

Tabelle 27: Übersicht über die Melkoperationen am Fr-223-Generator

| Nr. der Melk- operation | eluierte Fr-223- Impulsrate (Ipm) | eluierte Ra-223- Impulsrate (Ipm) |
|----------------------------|-----------------------------------------|-----------------------------------------|
| 1 | 93 058 | 27 940 |
| 2 | 92 680 | 28 810 |
| 3 | 92 750 | 32 790 |
| 8 | 103 600 | 47 520 |
| 9 | 1 06 560 | 51 860 |
| 10 | 103 870 | 53 070 |

Literatur

- (1) N.D.Charkes, D.H.Skarloff, J.Bierly; American J. of Roentgenology <u>91</u>, 1121 (1964)
- (2) R.Spencer, R.Herbert, M.W.Rish, W.A.Little; British J. of Radiology 40, 641 (1967)
- (3) R.L.Meckelnburg; J. of Nuclear Medicine 5, 929 (1964)
- (4) M.Blau, Y.Laor, M.A.Bender; J. of Nuclear Medicine 4, 193 (1963)
- (5) D.M.Skarloff, N.D.Charkes, J.Gershon-Cohen; J. of Nuclear Medicine 5, 345 (1964)
- (6) M.K.Loken, J.D.Mc Gibbon; J. of Nuclear Medicine 8, 273 (1967)
- (7) R.T.Morrison, R.E.Peterson, F.Benoit; J. of Nuclear Medicine 8, 392 (1967)
- (8) V.R.Mc Cready, M.V.Cottrall, E.O.Field, R.J.French, N.G.Trott; British J. of Radiology 39, 791 (1966)
- (9) V.R.Mc Cready, R.J.French, M.M.Gwyther; Nuclear Medicine (Stuttgart) 6, 407 (1967)
- (10) N.D.Charkes, D.M.Skarloff; Young; American J. of Roentgenology <u>96</u>, 647 (1966)
- (11) W.G.Myers, M.Olejar; J. of Nuclear Medicine 4, 202 (1963)
- (12) H.N.Wagner, D.E.Tow, R.A.Milch, W.A.North; J. of Nuclear Medicine 1, 362 (1966)
- (13) D.A. Webber, E.J. Greenberg, A. Dimich, P.J. Kennedy, W.P.L. Myers, J.S. Laughlin; J. of Nuclear Medicine 8, 271 (1967)
- (14) G.C.H.Bauer; Symposium at the Oak Ridge Institute of Nuclear Studies (1.-4.9. 1965) Proceedings, 593-602 (1966) Oak Ridge, Tenn., US. Atomic Energy Commission
- (15) R.Spencer; British J. of Radiology <u>38</u>, 318 (1965)
- (16) D.Goodwin, R.Donabedian;
 J. of Nuclear Medicine 7 381 (1966)
- (17) L.Rosenthall; Canadian Medical Association J. <u>97</u>, 212 (1967)
- (18) D.E.Tow, H.N.Wagner; J. of the American Medical Association 199, 610 (1967)

- (38) E.M.Burrows, P.M.Kimber, B.A.Goddard; British Medical J. 5596, 29 (1968)
- (39) J.L.Quinn, I.Ciric, W.N.Hauser; J. Am. Med. Ass. 194, 157 (1965)
- (40) D.E.Kuhl; J. of Nuclear Medicine 6, 334 (1965)
- (41) J.F.Mack, M.M.Webber, L.R.Bennett; J. of Nuclear Medicine 7, 663 (1966)
- (42) M.M.Webber; Am. J. Roentg. 94, 815 (1965)
- (43) J.L.Quinn, W.Hauser, I.Ciric; J. of Nuclear Medicine 6, 333 (1965)
- (44) J.L.Quinn; Nuclear Medicine 5, 309 (1966)
- (45) J.G.Mc Afee et. al.; J. of Nuclear Medicine 5, 811 (1964)
- (46) R.L.Witcofski et. al.; J. of Nuclear Medicine 6, 524 (1965)
- (47) W.Börner et. al.; Med. Welt (Stuttgart) 1, 27 (1966)
- (48) D.B.Sodee; J. of Nuclear Medicine <u>7</u>, 564 (1966)
- (49) T.P.Sanders, D.E.Kuhl;
 J. of Nuclear Medicine 7, 341 (1966)
- (50) W.Borner, E.Moll, H.Bayer; Med. Welt 21, 1151 (1965)
- (51) R.L.Witcofski, T.T.Bolliger; J. of Nuclear Medicine 6, 555 (1965)
- (52) A.Gottschalk, K.A.Lathrop, P.V.Harper; J. of Nuclear Medicine 7, 373 (1966)
- (53) P.V.Harper, K.A.Lathrop, A.Gottschalk; "Radioactive Pharmaceuticals", Prodeedings of a Symposium held at Oak Ridge Inst. of Nucl. Studies, Nov. 1965 (Symposium Series 6), Washington, U.S.A.E.C. 1966, 335
- 54) P.V.Harper, K.A.Lathrop, P.Richards; J. of Nuclear Medicine <u>5</u>, 382 (1964)
- 55) S.M.Larson, W.B.Nelp;
 J. of Nuclear Medicine <u>7</u>, 364 (1966)
- 56) O.L.Garzon, M.G.Palcos, R.Radicella; Int. J. Appl. Rad. Isot. <u>16</u>, 613 (1965)
- 57) O.Degrossi, J.M.Seeber, M.Gotta; Minerva Nucl. <u>9</u>, 424 (1965)

- (58) K.A.Gottschalk, P.V.Harper, F.Jimminez, J.P.Petasnick; J. of Nuclear Medicine 6, 349 (1965)
- (59) J.P.Petasnick, A.Gottschalk; J. of Nuclear Medicine <u>6</u>, 362 (1965)
- (60) M.M.Webber, L.R.Bennettt, E.L.Suprenant; J. of Nuclear Medicine 7, 353 (1966)
- (61) J.G.Mc Afee, H.S.Stern, G.F.Fueger, M.S.Baggish, G.D.Holzman, I.Zolle;
 J. of Nuclear Medicine 5, 936 (1964)
- (62) H.S.Stern, I.Zolle; J.G.Mc Afee; Int. J. Appl. Rad. Isot. <u>16</u>, 283 (1965)
- (63) T. de Paoli, A. Wagner, I.O. Nicolini, R. Radicella; Int. J. Appl. Rad. Isot. <u>17</u>, 551 (1966)
- (64) H.S.Stern, J.G.Mc Afee, I.Zolle;
 "Radioactive Pharmaceuticals" Proceedings of a Symposium held
 the Oak Ridge Inst. of Nucl. Studies, Nov. 1965
 (Symposium Series 6), Washington, USAEC 1966, 359
- (65) S.M.Larson, W.B.Nelp; J. of Nuclear Medicine <u>6</u>, 364 (1965)
- (66) P.V.Harper, R.Beck, D.Charleston; K.A.Lathrop; Nucleonics 22, 50 (1964)
- (67) G.B.Cook, J.Eakins, N.Veall; Int. J. Appl. Rad. Isot. <u>1</u>, 85 (1956)
- (68) U.Feine; Nucl. Med. <u>1</u>, 159 (1959)
- (69) R.F.Doering, W.D.Tucker, L.G.Stang jr.; J. of Nuclear Medicine 4, 54 (1963)
- (70) R.F.Doering, W.D.Tucker, L.G.Stang jr.; J. inorg. nucl. chem. <u>15</u>, 215 (1960)
- (71) R.F.Doering, W.D.Tucker, L.G.Stang jr.; BNL-5454 (1961)
- (72) R.F.Doering, W.D.Tucker; U.S. Pat. 3,156, 532 (1964)
- (73) L.G.Stang; BNL-864
- (74) W.D.Tucker, R.F.Doering, M.W.Greene, L.G.Stang; BNL-4940
- (75) W.D.Tucker, R.F.Doering; M.W.Greene, L.G.Stang; BNL-4908
- (76) K.H.Lieser, K.Bächmann; Z. anal. Chem. 225, 379 (1967)
- (77) M.Blau, R.R.Zielinsky, M.A.Bender;
 Nucleonics 24, 60 (1966)
 K.A.Kraus, F.Nelson; J. phys. chem. 58, 11 (1954)

- (78) J. Törkö; Atompraxis <u>12</u>, 97 (1966)
- (79) K.H.Lieser, K.Bächmann; Z. anal. Chem. <u>225</u>. 379 (1967)
- (80) R.L.Hayes, W.R.Butler jr.; J. Chem. Educ. <u>37</u>, 590 (1960)
- (81) KFK-41
- (82) J.Bastian, K.H.Lieser; Radiochimica Acta 6, 216 (1966)
- (83) K.H.Lieser, E.Kluge; Radiochimica Acta 7, 3 (1969)
- (84) K.H.Lieser, W.Hild; Naturwissenschaften 47, 494 (1960)
- (85) S.S.Berman, W.A.E.Mc Bryde; Can. J. Chem. <u>36</u>, 835 (1958)
- (86) K.A.Kraus, F.Nelson; Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf, Vol. 7, 113 (1955) (P/837)
- 87) K.A.Kraus, F.Nelson, G.W.Smith; J. Phys. Chem. <u>58</u>, 11 (1954)
- 88) P.Bedrossian, T.Lengyel, J.Törkö; Atompraxis <u>14</u>, 1 (1968)

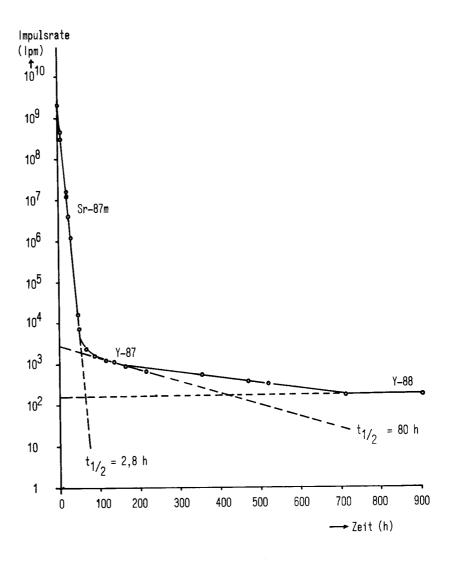


Abb. 1 : Zerfallskurve für Probe Nr. 1

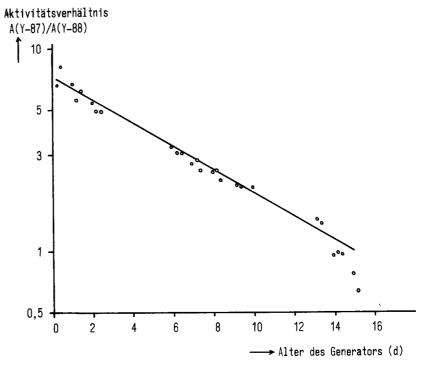


Abb. 2 : Abhängigkeit des Verhältnisses der Aktivität von Y-87 zu der von Y-88 im Eluat von dem Alter des Generators

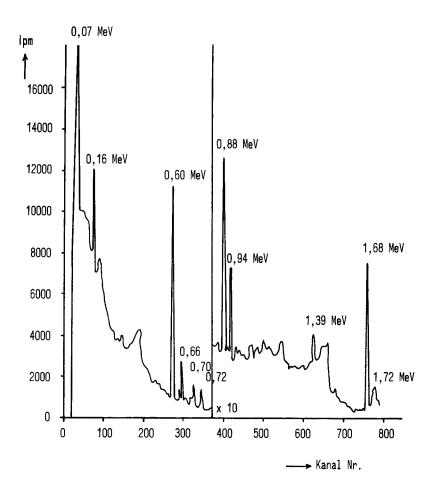


Abb. 3 : y- Spektrum der langlebigen Restaktivität des Tc-99m-Generators

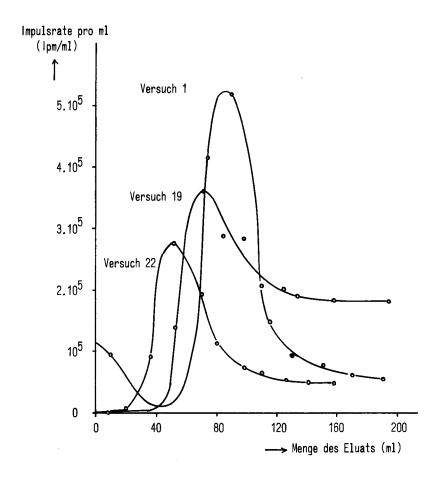


Abb. 4 : Elutionskurven für Y-90 bei verschiedener Betriebsdauer des Generators

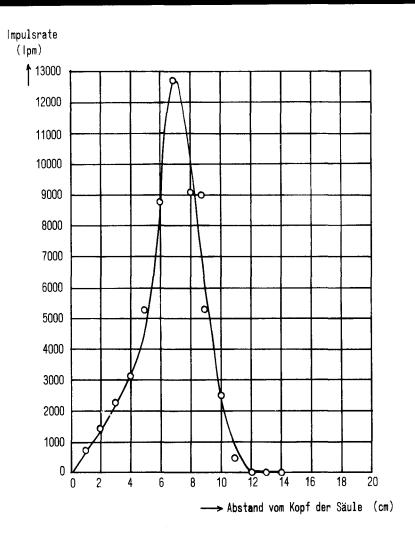


Abb. 5 : Aktivitätsverteilung des Sr-90 auf der Säule

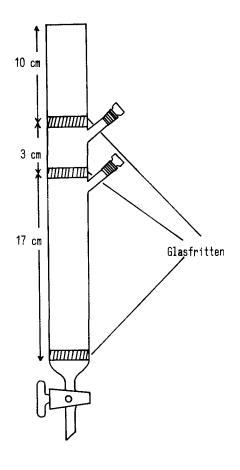


Abb. 6: Skizze des La-140-Generators

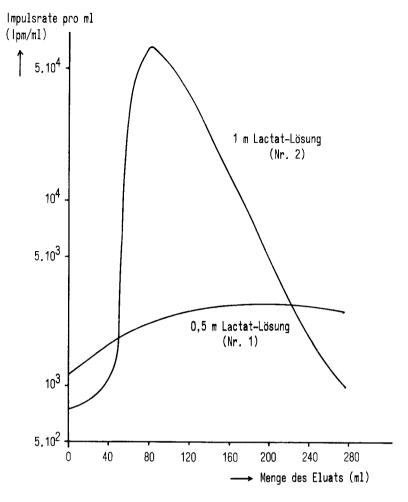
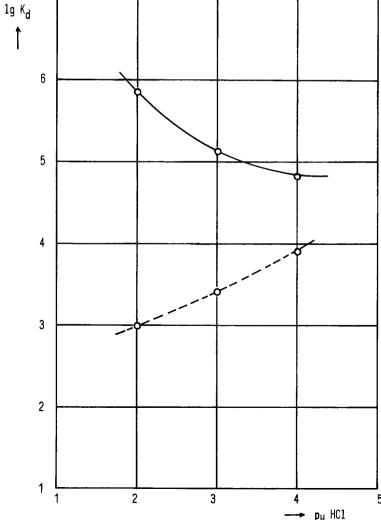


Abb. 7: Elutionskurve für La-140 bei verschiedener Lactat-Konzentration



→ p_H HC1 Abb. 8 : Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten K_d (ml/mval) für Cäsium und Barium von der HC1-Konzentration

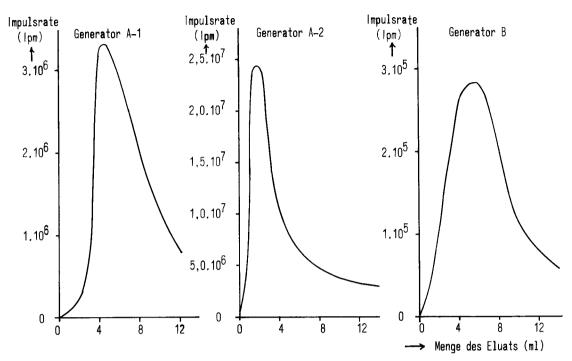


Abb. 9 : Elutionskurven für Rh-103m verschiedener Generatoren

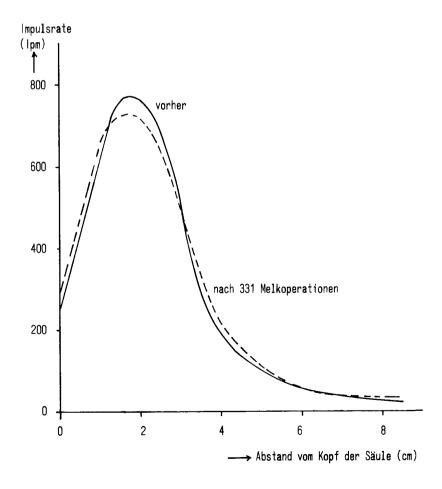


Abb. 10 : Aktivitätsverteilung des Rb-83 auf der Säule vor und nach 331 Melkoperationen

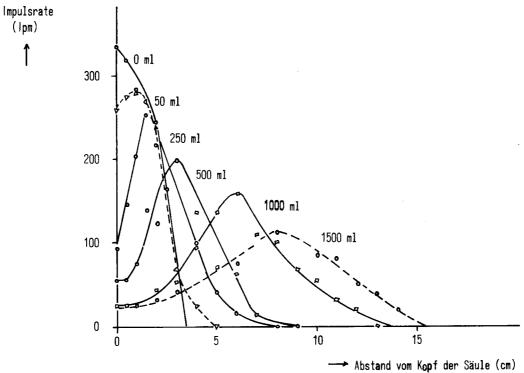


Abb. 11: Aktivitätsverteilung von Y-90 auf der Säule nach Elution mit verschiedenen Mengen an 0,04 n HCl; Elutionsgeschwindigkeit: 10 ml/min

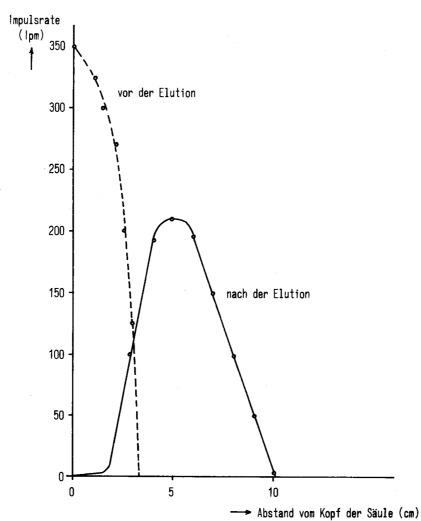


Abb. 12: Aktivitätsverteilung von Y-90 auf der Säule nach Elution mit 1000 ml 0,04 n HCl; Elutionsgeschwindigkeit: 4 ml/min

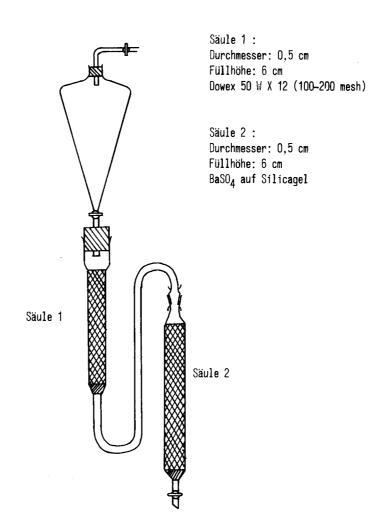


Abb. 13 : Melksystem für Fr-223 nach K.H.Lieser und E.Kluge

AN UNSERE LESER

Alle von der Kommission der Europäischen Gemeinschaften veröffentlichten wissenschaftlichen und technischen Berichte werden in der Monatszeitschrift "euro-abstracts" angezeigt.

Abonnements (1 Jahr: DM 60,-Bfrs 820,-) und Probehefte sind erhältlich bei:

Handelsblatt GmbH "euro-abstracts" D-4 Düsseldorf 1 Postfach 1102 Deutschland

oder

Amt für ämtliche Veröffentlichungen der Europäischen Gemeinschaften Postfach 1003 - Luxemburg/Bahnhof 37, Glesenerstrasse, Luxemburg

Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel

VERTRIEBSSTELLEN

Alle von der Kommission der Europäischen Gemeinschaften veröffentlichten Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich. Bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagseite jedes Berichts stehen, deutlich angeben.

AMT FÜR ÄMTLICHE VERÖFFENTLICHUNGEN DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

Postfach 1003 - Luxemburg/Bahnhof 37, Glesenerstrasse, Luxemburg (Compte chèque postal Nº 191-90)

BELGIQUE — BELGIE

MONITEUR BELGE Rue de Louvain, 40-42 - B-1000 Bruxelles BELGISCH STAATSBLAD Leuvenseweg 40-42 - B-1000 Brussel

DEUTSCHLAND

VERLAG BUNDESANZEIGER Postfach 108 006 - D-5 Köln 1

FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE DES PUBLICATIONS DES COMMUNAUTÉS EUROPÉENNES rue Desaix, 26 - F-75 Paris 15°

ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO Piazza G. Verdi, 10 - I-00198 Roma

LUXEMBOURG

OFFICE DES PUBLICATIONS OFFICIELLES DES COMMUNAUTÉS EUROPÉENNES Case Postale 1003 - Luxembourg/gare 37, rue Glesener - Luxembourg

NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ en UITGEVERIJBEDRIJF Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE P.O. Box 569 - London S.E.1

Kommission der Europäischen Gemeinschaften G.D. XIII - C.I.D. 29, rue Aldringer Luxembourg