

# 一种新的高活性 $^{99m}\text{Tc}$ 发生器

[Levin VL, et al, Int J Appl Radiat Isotopes 30 (7) : 450~451, 1979 (英文)]

发生器制备的  $^{99m}\text{Tc}$  的放射性药剂在核医学中有很重要的作用。用于制备这些药物的原始  $^{99m}\text{Tc}$  溶液必须有足够高的放射性浓度 (10~100毫居里/毫升或者更高)。放射性的和稳定的杂质都应该尽可能低。

为了满足第一个要求,人们必须用一种高放射性比度的  $^{99}\text{Mo}$  制剂 (不低于1居里/克) 来生产发生器。高比度  $^{99}\text{Mo}$  可以用高通量中子流照射天然钼或富集的  $^{99}\text{Mo}$  来制得,也可以从混合裂变产物中分离无载体  $^{99}\text{Mo}$  来制备。由第二种方法生产的  $^{99}\text{Mo}$  制备的发生器更为紧凑,获得的  $^{99m}\text{Tc}$  浓度更高。

为了用无载体  $^{99}\text{Mo}$  来制备  $^{99m}\text{Tc}$  发生器,我们首先试用了层析级的氧化铝作吸附剂。然而,  $^{99m}\text{Tc}$  的产额随着发生器中  $^{99}\text{Mo}$  浓度的提高可降低到 10%。

利用氧化剂 (0.01N  $\text{HNO}_3$  或者氧气) 与吸附剂作用的方法可把  $^{99m}\text{Tc}$  的产额提高到 70~90%。这与文献上所报道的一致,即如果  $^{99}\text{Mo}$  的比度超过一定范围时,发生器中的  $^{99m}\text{Tc}$  以还原态形式牢固地吸附在氧化铝上。

我们认为,在氧化铝中加入一种氧化剂,洗脱液要被一种有毒的化学品种污染,或者会干扰  $^{99m}\text{Tc}$  放射性药剂的制备。因此,我们没有采用外加氧化剂的方法,而宁愿制备一种新的  $^{99}\text{Mo}$  的吸附剂,这种吸附剂含有一种牢固结合、难溶的氧化剂。曾经有人建议用二氧化锰代替硅胶作  $^{99}\text{Mo}$  的吸附剂。但是我们在实验中发现,单独用二氧化锰填充的柱对液流的阻力太大,而且洗脱液中锰的含量太高。

将 30~60 目的硅胶 (要求纯化去铁) 浸入锰盐溶液中 (由 100 克碱式碳酸锰溶于 200 毫升 8.2M  $\text{HNO}_3$  中制成), 然后依次过滤、干燥,并于 400℃ 下灼烧 3~4 小时。由此制备的吸附剂含有 20~30% 的二氧化锰。

无载体  $^{99}\text{Mo}$  用二 - (2 - 乙基己基) 磷酸 ( $\text{D}_2\text{EHPA}$ ) 柱萃取色层法从混合裂变产物中分离得到。 $^{99}\text{Mo}$  制剂溶液的酸度为 0.01N  $\text{HNO}_3$ , 放射性浓度为 1000 毫居里/毫升,放射性核素的纯度不低于 99.8%,  $\alpha$  辐射的含量小于 5 次衰变/分·毫升。该溶液用来制备发生器。

将此溶液的 pH 调节到 2 左右,然后倒入如图 1 所示的玻璃柱中。柱中填有经过 0.01N  $\text{HNO}_3$  预处理的吸附剂。此后,用 100 毫升 0.01N  $\text{HNO}_3$ , 60 毫升蒸馏水和 50 毫升 0.9%  $\text{NaCl}$  溶液连续洗涤柱子。柱子用带有铝盖的橡皮塞子封住。在有些实验中,柱子封住后再用加热或  $\gamma$  射线照射方法进行消毒。在经过 20~23 小时的生长期后,  $^{99m}\text{Tc}$  用 0.9%  $\text{NaCl}$  溶液洗脱。溶液中  $^{99m}\text{Tc}$  的放射性用常见的  $\text{NaI}(\text{Tl})$  闪烁探测器来测量。

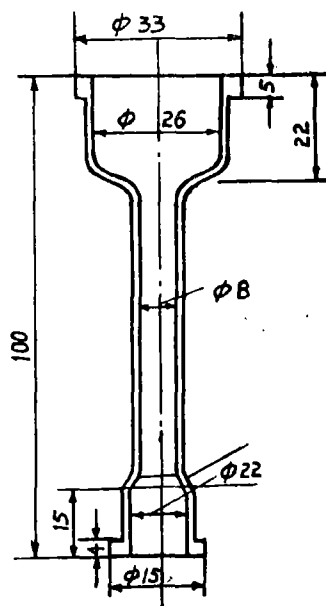


图 1  $^{99m}\text{Tc}$  发生器的玻璃柱

洗脱液的  $\gamma$  谱在 0.3~1.0 MeV 能量范围测量,为了测定制剂的放射性核素的纯度,用了一个 0.3~0.4 厘米厚的铅吸收片。以过锡酸盐形式存在的  $^{99m}\text{Tc}$  的组分用电泳法测定,使用的磷酸盐缓冲溶液的 pH 为 7.2。(电泳持续时间为 45 分钟,电位梯度为 16 伏/厘米)。

实验结果表明,在接触 10 分钟左右以后,有 95% 以上的  $^{99}\text{Mo}$  被新的吸附剂吸附了。溶液的 pH 范围在 1 到 7 之间变化,对钼的吸附程度没有影响 (表 1)。

$^{99}\text{Mo}$  在吸附剂与溶液之间的分配系数在 pH = 3

表1 不同pH时,  $^{99}\text{Mo}$  在吸附剂与溶液之间的分配系数 ( $K_p$ )

pH	12	7	5	3	1
$K_p$	48*	95	99	98	94

\*变化系数为100%左右

~5时达到极大值, 为98~99%。在pH=12时, 吸附有明显的下降。

表2 洗脱液与原始  $^{99}\text{Mo}$  溶液中放射性杂质核素的浓度比

放射性杂质核素	$^{131}\text{I}$	$^{132}\text{Te} + ^{132}\text{I}$	$^{95}\text{Nb} + ^{95}\text{Zr}$	$^{140}\text{Ba} + ^{140}\text{La}$
浓度比(洗脱液/原始溶液)	$(0.2 \sim 0.9) \times 10^{-2}$	$(0.2 \sim 0.6) \times 10^{-2}$	$0.9 \times 10^{-2}$	$(2.7 \sim 6.0) \times 10^{-1}$

从表3所列的数据可见,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  保持着高的产额(80~90%), 它与发生器中  $^{99}\text{Mo}$  的放射性无关。表中所示的是发生器使用开始与结束时的数据(使用期15天)。这一时期发生器中  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  的平衡放射性是不同的, 为250~1300毫居里。所有被吸附的  $^{99}\text{Mo}$  集中

在用新吸附剂制备的发生器流出的洗脱液中, 其所含的放射性杂质核素比原始溶液低10~100倍(表2)。洗脱液中  $^{99}\text{Mo}$  的含量低于0.01%, 大多数情况下低于0.001%。杂质锰的含量在  $2.6 \pm 1.1$  微克/毫升, 其它金属含量低于10微克/毫升。在洗脱液的 pH=5~7 范围内, 洗脱液中的  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  事实上是以过铊酸盐形式存在的。

在柱顶部的4~6毫米处。因为  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  的产额与吸附剂的活性(高至10~15居里/立方厘米)无关, 我们确信  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  产额的提高是由于二氧化锰的作用所致。

推荐用来制备发生器的新吸附剂对  $^{99}\text{Mo}$  有很强的亲和力, 当  $^{99}\text{Mo}$  从柱中滤过时, 有99%~100%的

表3  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  发生器的特性\* (用加热法消毒)

发生器序号	吸附剂上 $^{99}\text{Mo}$ 吸附百分数(%)	发生器中 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 放射性(毫居里)	10ml洗脱液中 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 产额(%)	
			发生器制备后1天	发生器制备后15天
1	99±1	255±4	87±4	86±6
2	99.55±0.05	425	86±2	
3**	99.8	1270	83	78

\*表中数据为5次实验的平均值

\*\*变化系数为10%左右

$^{99}\text{Mo}$  被吸附剂吸附了(表3)。

曾经用二种不同内径的柱来制备发生器, 以确定柱内径对于洗脱曲线形状的影响。用内径为12毫米(曲线1)和8毫米(曲线2)二根柱测得的两条曲线示于图2。

如图所见, 内径较小的柱, 洗脱液收集体积较小。根据同位素发生器的理论可预期到这种情况。对于内径为12毫米的柱, 8毫升9%NaCl溶液就可以把90%左右的  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  洗脱, 而用内径为8毫米的柱, 只要5毫升同样的洗脱剂就能洗脱  $88.7 \pm 3.4\%$  的  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 。在发生器的整个使用期间, 它的洗脱曲线形状不会发生变化。

无论用加热法, 还是用照射法进行消毒, 对于发生器的效能均无影响, 但是在用加热法消毒时, 发现  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  的产额有所下降(至76±6%)。

本文所述的  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  发生器在苏联已有商品生产。

[俞誉福译 付方华 蒲瑞章校]

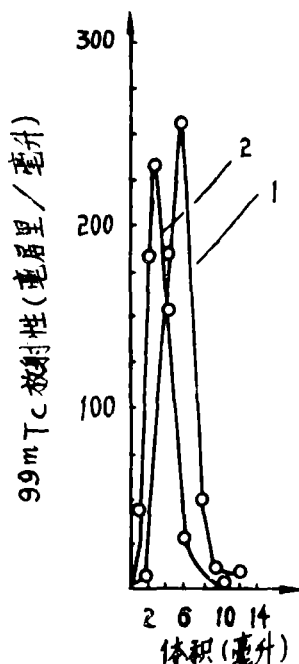


图2  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  发生器的典型洗脱曲线