

## Anwendungsbeispiele der Hochspannungselektrophorese zur Trennung von Radionukliden, 6. Mitt.:

Elektrophorese im Gegenstrom zur Darstellung von reinem  
Yttrium-90

Von

**K. Buchtela**

Aus dem Atominstitut der Österreichischen Hochschulen Wien, Österreich

Mit 2 Abbildungen

(Eingegangen am 18. Oktober 1973)

*Application of High Voltage Electrophoresis for the Separation  
of Radionuclides, VI: Countercurrent Electrophoresis for the  
Separation of Pure Yttrium-90*

Pure radionuclides are separated by countercurrent electrophoresis. These radionuclides migrate in a countercurrent of inactive isotopes of the radioactive impurities. Pure Yttrium-90 is separated (half life  $63.50 \pm 0.12$  hours). Medical application of this radionuclide is discussed.

### 1. Einleitung

Die Darstellung von reinem Yttrium-90 hat in der präparativen Radiochemie nicht nur für die Ermittlung der exakten Halbwertszeit dieses Nuklids Bedeutung; auch in der Nuklearmedizin besteht wegen der therapeutischen Anwendungsmöglichkeiten Interesse an reinen  $^{90}\text{Y}$ -Präparaten. In vorliegender Arbeit soll ein Verfahren beschrieben werden, welches die Darstellung reinen Yttriums mittels eines elektrophoretischen Verfahrens ermöglicht.

### 2. Anwendungsmöglichkeiten von $^{90}\text{Y}$ in der Medizin

Radionuklide, welche  $\beta$ -Strahlen hoher Energie ( $> 1,5$  MeV) ausstrahlen und mit einer Halbwertszeit von einigen Tagen zerfallen, sind für medizinische Anwendungen von Interesse: Sie werden als wirksames Hilfsmittel zur Bekämpfung bösartiger Tumore eingesetzt.

Man appliziert  $^{198}\text{Au}$ -Präparate, doch emittiert dieses Radionuklid auch Gammastrahlung. Ein reiner Betastrahler, wie z. B.  $^{90}\text{Y}$  wäre vorteilhafter.  $^{90}\text{Y}$  wurde versuchsweise zur Behandlung von Hypo-

physetumoren, Prostata- und Mammacarcinomen, *Cushingscher* Krankheit und Acromegalie eingesetzt.

Es wurden gute Heilerfolge erzielt<sup>1</sup>. Um das Risiko einer chemischen und strahlungsbedingten Intoxikation auszuschalten, muß <sup>90</sup>Y für eine therapeutische Anwendung eine hohe spezifische Aktivität aufweisen und möglichst arm an <sup>90</sup>Sr sein. Beimengungen von <sup>90</sup>Sr lagern sich nach der therapeutischen Applikation z. T. im Knochengewebe ab und können dort Strahlenschäden verursachen. Der Dekontaminationsfaktor (Aktivität von Yttrium : Aktivität von Strontium) bei einer Abtrennung des Yttrium von Strontium muß mindestens 10<sup>7</sup> betragen, um <sup>90</sup>Y-Präparate zu erhalten, die für eine therapeutische Anwendung mit tragbarem Risiko geeignet sind. Da <sup>90</sup>Y von der erforderlichen Reinheit und von hoher spezif. Aktivität bisher nicht zur Verfügung stand, war eine verbreitete therapeutische Anwendung dieses Radionuklids nicht möglich.

### 3. Bisher angewendete Methoden zur Gewinnung von Yttrium-90

#### 3.1. Neutronenaktivierung

Frei von <sup>90</sup>Sr erhält man <sup>90</sup>Y durch Bestrahlung von <sup>89</sup>Y mit thermischen Neutronen im Reaktor. Aus <sup>89</sup>Y durch (n,  $\gamma$ )-Reaktion hergestelltes radioaktives Yttrium wird in der Medizin nur in Form von Yttriumoxid als Bestrahlungskapsel verwendet. Es ist für intravenöse, intramuskuläre und intraperitoneale Applikation unbrauchbar, da die spezif. Aktivität dieser Präparate zu gering ist; bei einer Neutronenflußdichte von 10<sup>13</sup> cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> werden bei „unendlich langer Bestrahlungszeit“ 2,2 Ci g<sup>-1</sup> erreicht.

#### 3.2. Gewinnung von Yttrium-90 aus Uranspaltungsprodukten

Yttrium von genügend hoher spezifischer Aktivität wird als Tochterprodukt des <sup>90</sup>Sr erhalten. <sup>90</sup>Sr entsteht zu 5,8% bei der Kernspaltung von <sup>235</sup>U mit thermischen Neutronen.

Nach der Aufarbeitung von Reaktorbrennelementen wird <sup>90</sup>Sr aus der Lösung der Spaltungsprodukte isoliert. Nachdem sich das „radioaktive Gleichgewicht“ zwischen <sup>90</sup>Sr und dem Tochterprodukt <sup>90</sup>Y eingestellt hat, trennt man das <sup>90</sup>Y ab. Die spezif. Aktivität dieses <sup>90</sup>Y kann aus der Formel für den Zerfall radioaktiver Nuklide errechnet werden; man erhält Präparate mit 5 · 10<sup>5</sup> Ci g<sup>-1</sup>.

Einige der bisher beschriebenen Trennmethoden seien kurz angeführt: Nach Zusatz von inaktivem Trägerisotop kann eine Fällung von Strontium als Nitrat (mit 80proz. Salpetersäure)<sup>2</sup> als Carbonat, Phosphat<sup>3</sup>, Oxalat oder Hydroxid<sup>4</sup> erfolgen. Für die Mitfällung von <sup>90</sup>Y mit Eisenhydroxid

wurden Pyridin, n-Butylamin u. a. verwendet<sup>5</sup>. Auch die Adsorption von Yttriumhydroxid an Glasfritten bzw. die Radiokolloidbildung wurde zur Abtrennung von <sup>90</sup>Y herangezogen<sup>6</sup>.

Mit Dibutylphosphorsäure, Di-(2-äthylhexyl)-phosphorsäure<sup>7</sup> oder Thenoyltrifluoracetone<sup>8</sup> läßt sich Yttrium aus wäßr. Lösung extrahieren. Bei allen diesen Verfahren betragen die Dekontaminationsfaktoren höchstens 10<sup>4</sup>.

Auch auf einer mit Tri-n-octylphosphinoxid beladenen Teflonsäule<sup>9</sup> können Strontium und Yttrium getrennt werden. Ferner wurden Säulen aus Strontiumsulfat eingesetzt<sup>10</sup>.

Für Papier- und Dünnschichtchromatographie wird ein Gemisch von Äthanol und 10proz. wäßr. Ammoniumrhodanidlösung als Laufmittel verwendet. Die Trennungen werden auf Chromatographierpapier<sup>11</sup> oder Silicagel-Dünnschichtplatten<sup>12</sup> durchgeführt.

Elektrophoretisch wurde Yttrium in 3 bis 4 Stdn. mit Citronensäure oder Äthylendiaminotetraessigsäure als Elektrolyten abgetrennt<sup>13</sup>. Damit werden Dekontaminationsfaktoren von 10<sup>5</sup> bis 10<sup>6</sup> erreicht. Durch mehrstufige kontinuierliche Elektrophorese können die Ergebnisse verbessert werden<sup>14</sup>.

Von einem mit der Gleichgewichtsmischung von <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y beladenen Kationenaustauscher wird mit Citratlösung Yttrium bei pH 4,0 und Strontium bei pH 6,0 eluiert<sup>15</sup>.

Es werden auch Ionenaustauschverfahren mit Ammoniumoxalatlösung<sup>16</sup> und  $\alpha$ -Hydroxyisobuttersäurelösung<sup>17</sup> als Eluentia beschrieben.

Von allen oben angegebenen Methoden werden mit der Ionenaustauscherelutionschromatographie die besten Ergebnisse erzielt: Es werden Dekontaminationsfaktoren bis zu 10<sup>7</sup> erreicht. Trotzdem hat dieses Verfahren, wie die Ausführungen im folgenden Absatz zeigen, einige Nachteile.

#### 4. Vergleich zwischen Ionenaustauscherelutionschromatographie, Elektrophorese und Elektrodialyse

Bei der *Ionenaustauscherelutionschromatographie* ist das Austauscherharz auch während der Ruheperioden mit hochaktivem Material beladen. Dieses verursacht Strahlenschädigung am Austauschermaterial: Kunstharzionenaustauscher verlieren durch eine Bestrahlungsdosis von 10<sup>8</sup> rad 20% der maximal nutzbaren Austauschkapazität. Die Zone des <sup>90</sup>Sr auf der Säule wird mit der Zeit immer breiter; dadurch wird die Dekontamination verschlechtert. Schließlich ist das abgetrennte <sup>90</sup>Y in einer ziemlich großen Menge an Lösungsmittel (mehrere 100 ml) gelöst.

In einer Lösung von Citronensäure oder Äthylendiaminotetraessigsäure wandern bei einer *Elektrophorese* Strontium und Yttrium in entgegengesetzte Richtungen<sup>18</sup>. Bei einer Elektrophorese im Gegenstrom von Strontium werden sehr reine <sup>90</sup>Y-Präparate erhalten. Für die Trägerelektrophorese können auch anorganische Trägermaterialien

eingesetzt werden (Kieselgel, Aluminiumoxid). Diese Materialien erleiden keine störenden Veränderungen durch die Bestrahlung. Eine Zonenverbreiterung läßt sich nicht verhindern. Das  $^{90}\text{Y}$  muß nach der Abtrennung erst vom Trägermaterial desorbiert werden.

Bei der *Elektrodialyse* ist nur ein sehr geringer Anteil der Radionuklide, welche in der Apparatur verarbeitet werden, mit dem einzigen strahlungsempfindlichen Teil der Anlage, nämlich der Ionenaustauschermembran in unmittelbarem Kontakt. Das radioaktive Material kann bei der Elektrodialyse in sehr kleinen Lösungsmittelmengen konzentriert abgetrennt werden. Diese Mengen hängen von den Volumina der Dialysezellen ab. Wie bei der Elektrophorese ist es auch bei der Elektrodialyse möglich, zwei zu trennende Komponenten in verschiedene Richtungen wandern zu lassen. Es werden Dekontaminationsfaktoren von  $> 10^8$  erzielt. Eine Abtrennung des  $^{90}\text{Y}$  von  $^{90}\text{Sr}$  mittels Elektrodialyse wurde bereits in einer früheren Arbeit beschrieben<sup>18</sup>.

## 5. Trennung von Yttrium-90 und Strontium-90 mittels Elektrophorese im Gegenstrom von Strontium

Man wählt einen Trägerelektrolyten, in dem Strontium und Yttrium bei einer Elektrophorese in einander entgegengesetzte Richtungen wandern<sup>18</sup>. Zu der Trägerlösung gibt man ein Strontiumsalz; die Gewichtsmenge dieses inaktiven Strontiums in der Lösung soll groß sein gegenüber der Gewichtsmenge an  $^{90}\text{Sr}$  in der Probe. Die Probe wird in der Mitte des Trägerstreifens aufgetragen. Während seiner elektrophoretischen Wanderung befindet sich das  $^{90}\text{Y}$  in einem Gegenstrom von inaktivem Strontium.

### 5.1. *Versuchsbeschreibung*

Die Probe von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$ , die für die hier beschriebenen Versuche verwendet wurde, enthielt nach Angaben der Herstellerfirma („The Radiochemical Centre“, Amersham, GB) keine Beimengungen an inaktiven Isotopen der beiden Radioelemente. Zur Elektrophorese wurden jeweils  $1,0 \mu\text{Ci}$  eingesetzt. Die beiden Radionuklide  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$  befanden sich im radioaktiven Gleichgewicht.

Als Beispiel seien die Ergebnisse von Trennungen angeführt, für die Citronensäure bzw. Äthylendiaminotetraessigsäure als Trägerelektrolyte verwendet wurden.

In Abb. 1 sind autoradiographische Aufnahmen und Diagramme, welche die Aktivitätsverteilung am Trägerstreifen nach  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Trennungen zeigen, dargestellt. Aus Aktivitätsmessungen zu verschiedenen Zeitpunkten lassen sich Werte für Abkling- und Nachwachskurven und die Dekontaminationsfaktoren ermitteln.

Soll das  $^{90}\text{Y}$  weiterverwendet werden, wird nach der Elektrophorese jener Bereich des Trägerstreifens, welcher das  $^{90}\text{Y}$  adsorbiert enthält, abgeschnitten und getrocknet. Dieser Trägerstreifen kann ohne Kontaminationsgefahr transportiert werden. Bis zur eigentlichen Applika-

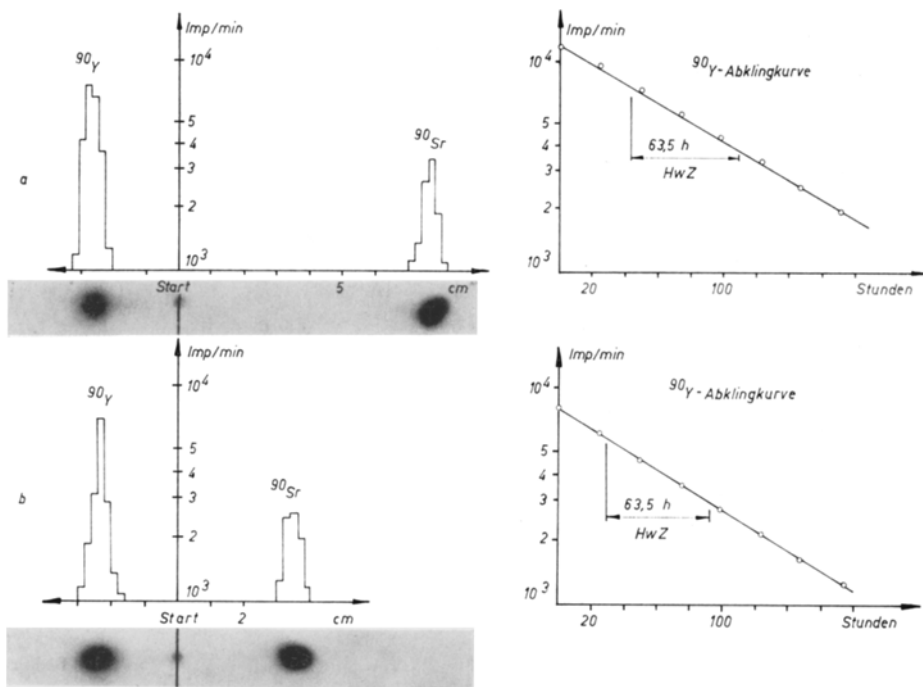


Abb. 1. Elektrophoretische Trennung von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$ :  $^{90}\text{Y}$  wandert im Gegenstrom von inaktivem Strontium. *a* Elektrophorese:  $50 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1}$ , 10 Min.; Lösung:  $0,01\text{m}$ -Citronensäure,  $0,01\text{m}$ -Strontiumnitrat; Trägermaterial: Acetylcellulose (Membranfolien zur Elektrophorese, Sartorius Membranfilter GmbH, Göttingen, BRD). *b* Elektrophorese:  $80 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1}$ , 6,5 Min.; Lösung:  $0,01\text{m}$ -Dinatriumsalz der Äthylendiaminotetraessigsäure,  $0,01\text{m}$ -Strontiumnitrat; Trägermaterial: Acetylcellulose (Membranfolien zur Elektrophorese)

tion, die wegen der kurzen Halbwertszeit (64 Stdn.) bald erfolgen soll, kann der Trägerstreifen mit dem adsorbierten Yttrium ohne großen Strahlenschutz Aufwand sicher aufbewahrt werden.

Um eine Applikationslösung zu bereiten, läßt man das  $^{90}\text{Y}$  vom Trägerstreifen elektrophoretisch in Gefäße einwandern, die mit physiologischer Kochsalzlösung gefüllt sind. Diese Elektrophorese dauert nur einige Minuten und die Kathodenlösung kann direkt zur Applika-

tion verwendet werden. Über die zur Elektrophorese verwendete Apparatur ist in einer anderen Arbeit bereits berichtet worden<sup>19</sup>. Von Vorteil ist bei diesem Verfahren, daß keine Teile einer Apparatur durch langlebige Radionuklide kontaminiert werden. Das langlebige  $^{90}\text{Sr}$  bleibt auf einem kleinen Bereich des ursprünglich verwendeten Trägermaterials adsorbiert. Nur im Kathodengefäß jener Elektrophoreseapparatur, die zur Bereitung der  $^{90}\text{Y}$ -Applikationslösung dient, kann radioaktives Material zurückbleiben.

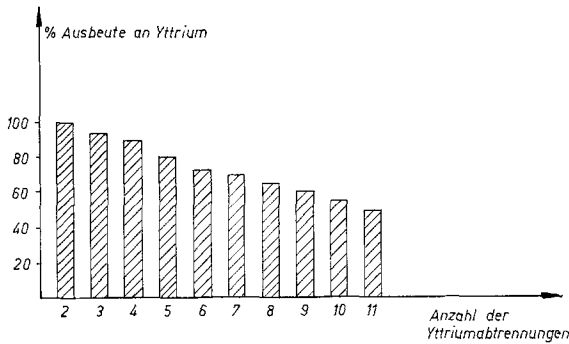


Abb. 2. Wiederholte Abtrennung von  $^{90}\text{Y}$  aus einer  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Mischung (Zeitdifferenz = 1 Stde.). Elektrophorese:  $85 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1}$ , 5 Min.; Lösung:  $0,01m$ -Dinatriumsalz der Äthylendiaminotetraessigsäure,  $0,01m$ -Strontiumnitrat; Trägermaterial: Acetylcellulose (Membranfolien zur Elektrophorese). Die Yttriumausbeuten werden vergleichend auf die zweite  $^{90}\text{Y}$ -Abtrennung (willkürliche Annahme: Ausb. 100%) bezogen

Als Nachteil des Verfahrens muß angeführt werden: Von einer  $^{90}\text{Sr}$ -Probe können nur einige wenige  $^{90}\text{Y}$ -Abtrennungen (meist 10 bis 15) durchgeführt werden. Nach einigen Trennungen verbreitert sich die  $^{90}\text{Sr}$ -Zone am Trägerstreifen und das radioaktive Strontium beginnt schließlich vom Elektropherogramm in das Kathodengefäß zu wandern. Die Dekontaminationsfaktoren werden nicht geringer, doch es sinkt die Ausbeute an  $^{90}\text{Y}$  nach jeder Abtrennung ab (Abb. 2). Dies wird in einem Modellversuch, dessen Ergebnisse in Abb. 2 graphisch dargestellt sind, gezeigt: Zuerst wurde aus einem  $^{90}\text{Y}/^{90}\text{Sr}$ -Präparat das  $^{90}\text{Y}$  mittels Elektrophorese abgetrennt. Dann wurden in Zeitabständen von je einer Stde. die Abtrennungen zehnmals wiederholt. Aus der mathematischen Formulierung der Gesetze für den radioaktiven Zerfall läßt sich errechnen, daß in der Zone des Strontiums während einer Stde. das Tochterprodukt Yttrium bis auf 1,05% der „Gleichgewichtsaktivität“ nachwächst. Die Ausbeute an  $^{90}\text{Y}$  bei diesen wiederholten Abtrennungen zeigt Abb. 2. Alle Ausbeuten sind auf die während einer Stde. nachwachsende  $^{90}\text{Y}$ -Aktivität bezogen.

Um eine therapeutisch wirksame lokale Anfangsdosis von 1000 rad pro Stde. in 1 Gramm Gewebe bei einer Tumorbekämpfung zu erzielen, müssen etwa 1 mCi  $^{90}\text{Y}$  pro Gramm Gewebe appliziert werden. Setzt man 100 mCi zur Elektrophorese ein, kann jede Stunde eine Aktivitätsmenge von etwa 1 mCi entnommen werden.

## 6. Bestimmung von Dekontaminationsfaktoren aus einer Abklingkurve des Tochternuklids

Aus dem Verhältnis der gemessenen Aktivität unmittelbar nach der Trennung und der gemessenen Aktivität nach dem Einstellen des radioaktiven Gleichgewichtes ergibt sich der Dekontaminationsfaktor  $D$ . Man muß dabei Mutter- und Tochternuklid mit gleicher oder verschiedener, aber bekannter Zählausbeute bestimmen können. Für den Zeitpunkt  $t = 0$  unmittelbar nach der Trennung ist der Dekontaminationsfaktor gegeben durch

$$D = \frac{A_0 - \frac{A_\infty}{2}}{\frac{A_\infty}{2}} \quad (1)$$

$A_0$  = gesamte absolute Zahl der radioaktiven Zerfälle im Präparat (Mutter- und Tochternuklid) zur Zeit  $t = 0$ .

$A_\infty$  = gesamte absolute Zahl der radioaktiven Zerfälle im Präparat (Mutter- und Tochternuklid) nach dem Einstellen des radioaktiven Gleichgewichtes.

Bei unbekanntem Zählausbeuten oder bei sehr hohen Dekontaminationsfaktoren stößt diese Bestimmungsmethode auf Schwierigkeiten: Bei sehr hohen Dekontaminationsfaktoren reicht ein und derselbe Strahlungsdetektor nicht zur Messung der gesamten Abklingkurve; es können sehr hohe und sehr niedrige Zählraten nicht mit demselben Meßgerät mit der erforderlichen Genauigkeit bestimmt werden. Durch Anwendung der Gleichung für den radioaktiven Zerfall auf den Ausdruck (1) kann der Dekontaminationsfaktor  $D$  aus der Zeit  $t$  errechnet werden, die zum Einstellen des radioaktiven Gleichgewichtes zwischen Mutter- und Tochternuklid benötigt wird.

$$D = 2^{\frac{t}{T_{1/2}}} \quad (2)$$

$T_{1/2}$  = Halbwertszeit des Tochternuklids.

Dieses Verfahren wurde bereits in einer früher veröffentlichten Arbeit zur Bestimmung der Dekontaminationsfaktoren bei elektrodialytischen Trennungen angewendet<sup>18</sup>.

### 6.1. Dekontaminationsfaktoren bei der elektrophoretischen Strontium-90/Yttrium-90-Trennung

Bei der Elektrophorese im Gegenstrom von Strontium konnten mit Citronensäure als Elektrolyt Dekontaminationsfaktoren von  $1 \cdot 10^7$  bis  $8 \cdot 10^7$ , mit dem Dinatriumsalz der Äthylendiaminotetraessigsäure Dekontaminationsfaktoren von  $> 10^8$  erzielt werden. Ein <sup>90</sup>Y-Präparat von 100  $\mu$ Ci lieferte nach einer Abklingzeit von 75 Tagen in einer „low-level“-Meßanlage (Intertechnique, Modell RA 12, Nullrate 0,6 Imp  $\cdot$  min<sup>-1</sup>, Zählhausbeute für <sup>90</sup>Y etwa 50%) keine nachweisbare Zählrate.

## 7. Halbwertszeitbestimmung von Yttrium-90

Da mit Hilfe dieses elektrophoretischen Verfahrens reines <sup>90</sup>Y gewonnen werden konnte, lag es nahe, auch die Halbwertszeit von <sup>90</sup>Y genau zu bestimmen.

Die meisten der bisher in der Literatur angegebenen Werte wurden aus Meßreihen erhalten, die sich über nicht mehr als fünf Halbwertszeiten des <sup>90</sup>Y erstreckten. Verunreinigungen durch langlebige Nuklide (<sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs) kann man bei diesen Versuchen nicht mit Sicherheit ausschließen. Eine Zusammenfassung der in der Literatur angeführten Werte für die Halbwertszeit des <sup>90</sup>Y wurde bereits an anderer Stelle gebracht<sup>20</sup>.

Die Halbwertszeit des mittels Elektrophorese im Gegenstrom abgetrennten Yttrium ergab sich zu  $63,50 \pm 0,12$  Stdn. (40 Messungen).

Nach einer elektrodialytischen Abtrennung wurde für die Halbwertszeit des <sup>90</sup>Y ein Wert von  $63,46 \pm 0,13$  Stdn. erhalten<sup>20</sup>. Die Meßergebnisse, die mit Präparaten aus elektrodialytischer und elektrophoretischer Abtrennung erhalten wurden, stimmen demnach gut überein; sie liegen aber etwas niedriger als alle bisher in der Literatur angeführten Werte. Dies ist durch das Fehlen langlebiger Verunreinigungen bedingt.

## Literatur

<sup>1</sup> H. R. v. Gunten, W. Scherle und H. Hügli, Nucl. Med. **3**, 417 (1963); R. D. Moseley, W. M. S. Ironside und P. V. Harper, Proc. 2nd Internat. Conf. Peaceful Uses At. Energy, Genève, Vol. **26**, p. 399 (1958); V. C. Catani und P. Lado, Tumori **47**, 32 (1961); M. H. Duggan, E. Jones, J. R. Mallard und G. F. Joplin, Proc. Conf. Prod. and Uses of Short-Lived Radio-



- isotopes Reactors IAEA Vienna 1962, Vol. 2, p. 213 (1963); *A. Pronanszko, Z. Paszko und C. Gorski*, Nowotwory **14**, 175 (1964); *A. P. M. Forrest, F. C. Greenwood, H. J. Stewart, J. P. Thomas, R. G. Wood, W. R. G. Thomas, A. S. Bligh und G. M. Mitchell*, Proc. Roy. Soc. Med. **58**, 475 (1965); *F. Camanni, F. Massara und G. M. Molinatti*, Minerva Med. **57**, 8, 21 (1966).
- <sup>2</sup> *M. L. Salutsky und H. W. Kirby*, Anal. Chem. **27**, 567 (1955).
- <sup>3</sup> *H. L. Volchok und J. L. Kulp*, Phys. Rev. **97**, 102 (1955); *G. M. Kanapilly und G. J. Newton*, J. Radiat Isotopes **22**, 567 (1971).
- <sup>4</sup> *J. H. Biheller*, Atompraxis **12**, 465 (1966).
- <sup>5</sup> *Y. Koda und S. Takagi*, Rep. Gov. Ind. Res. Inst. Nagoya **14**, 377 (1965).
- <sup>6</sup> *G. K. Schweitzer, B. R. Stein und W. M. Hackson*, J. Amer. Chem. Soc. **75**, 793 (1953).
- <sup>7</sup> *D. F. Peppard, G. M. Mason und S. W. Moline*, J. Inorg. Nucl. Chem. **5**, 141 (1957).
- <sup>8</sup> *A. S. Goldin*, U.S. Atomic Energy Commission Report TID-7517 (Part 1b), p. 323 (1956); *W. B. Silker*, Hanford Atomic Products Operation Report HW-55117, May 1958; *A. S. Goldin, R. J. Velten und G. W. Frischkorn*, Anal. Chem. **31**, 1490 (1959).
- <sup>9</sup> *I. Stransky, M. Bittner und J. Kruk*, Nukleonika **11**, 47 (1966).
- <sup>10</sup> *H. Hamaguchi und N. Omura*, Nature **211**, 1295 (1966).
- <sup>11</sup> *T. Kiba, S. Ohashi und S. Tada*, Bull. Chem. Soc. Japan **29**, 745 (1956).
- <sup>12</sup> *H. Hamaguchi, N. Ikeda und A. Ikasawa*, Radioisotopes [Japan] **13**, 377 (1964).
- <sup>13</sup> *M. Lederer*, C. r. hebdomad. Sé. Acad. Sci. **236**, 200 (1953).
- <sup>14</sup> *K. Buchtela*, Mh. Chem. **104**, 1551 (1973).
- <sup>15</sup> *E. A. Martell*, The Chicago Sunshine Method. U.S. Atomic Energy Commission Report AECU-3262, p. 47, May 1956; *A. Bonnin*, Bull. Soc. Chim. France **1956**, 1563.
- <sup>16</sup> *C. Lepsky und G. Istelli*, Commit. naz. ricerche nucleari CNI-13, 1959; *R. F. Doering, W. D. Tucker und L. G. Stang, Jr.*, J. Nucl. Med. **4**, 54—59 (1963); *E. Nieman und K. Frühaufl*, Radiochim. Acta **1**, 55 (1963); *Y. Suzuki*, Internat. J. Appl. Radiation Isotopes **15**, 599 (1964).
- <sup>17</sup> *J. Stransky und A. Zjelinski*, Nukleonika **9**, 801 (1964).
- <sup>18</sup> *P. Groll, F. Grass und K. Buchtela*, Radiochim. Acta **12**, 152 (1969).
- <sup>19</sup> *K. Aitzetmüller, K. Buchtela und F. Grass*, J. Chromatogr. **22**, 431 (1966).
- <sup>20</sup> *P. Groll, F. Grass und K. Buchtela*, J. Radioanal. Chem. **1**, 179 (1968).

Dr. K. Buchtela  
 Atominstitut der  
 Österreichischen Hochschulen  
 Schüttelstraße 115  
 A-1020 Wien  
 Österreich