

PURIFICAÇÃO DE ^{99}Mo , OBTIDO A PARTIR DA FISSÃO DO ^{235}U , EMPREGANDO-SE A RESINA CHELLEX-100. APLICAÇÃO À PREPARAÇÃO DE GERADORES DE $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Tatiana Lavinias e Sonia A. C. Mestnik.

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN/CNEN-SP
Caixa Postal 11049
05422-970, São Paulo/SP, Brasil.

RESUMO

O trabalho em questão é parte de um processo químico, baseado na metodologia desenvolvida por Sameh, que visa a produção de ^{99}Mo a partir da fissão do ^{235}U , para a preparação de geradores de $^{99\text{m}}\text{Tc}$. O objetivo consiste na purificação do ^{99}Mo empregando-se a resina do tipo quelante Chelex-100 (Bio Rad), pelo fato do molibdênio apresentar nesta, alto coeficiente de distribuição (10^4) em relação aos contaminantes (outros produtos de fissão). Isto deve-se a complexação do molibdênio com íons tiocianato formando um complexo estável que é retido na Chelex-100 devido aos grupos nitrilodiacetato presentes na mesma.

Palavras-chave: molibdênio-99, produtos de fissão, produção de radioisótopos, separação química.

I. INTRODUÇÃO

O $^{99\text{m}}\text{Tc}$ é um dos radioisótopos de grande interesse em medicina nuclear devido as suas propriedades nucleares: meia-vida curta (6,02 horas), emissão de raios gama de baixa energia (140 keV) e nenhuma emissão beta, proporcionando baixas doses de exposição ao paciente e permitindo eventuais repetições de exames em intervalos de tempo menores[1,2]. É facilmente colimado pelos aparelhos cintilográficos de uso em medicina nuclear, resultando na obtenção de excelentes imagens. O $^{99\text{m}}\text{Tc}$ é empregado na forma química de pertechnetato ou acoplado a compostos orgânicos possibilitando a realização dos mais variados diagnósticos. O $^{99\text{m}}\text{Tc}$ é formado a partir do Mo-99, decaindo por transição isomérica ao ^{99}Tc . É utilizado amplamente em medicina nuclear sendo obtido a partir de geradores $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ [1,3,4].

Os sistemas geradores de radioisótopos são compostos por dois radionuclídeos, um deles de meia-vida longa (chamado pai) que gera por decaimento o outro de meia-vida curta (chamado filho). Os dois encontram-se em equilíbrio transiente, permitindo que o $^{99\text{m}}\text{Tc}$ decaia com a meia-vida do pai, ^{99}Mo , tornando possível portanto, a utilização do $^{99\text{m}}\text{Tc}$ em locais distantes do centro de produção[3,4,5,6].

O ^{99}Mo pode ser obtido a partir da irradiação de ^{98}Mo com neutrons térmicos, por meio de um processo simples, porém gerando rendimentos de ^{99}Mo muito baixos. Pode ainda ser obtido via fissão do ^{235}U , com rendimentos ao redor de 6,1% e com atividades específicas altas, cerca de 1000 vezes maior do que pela reação ^{98}Mo

(n, γ) ^{99}Mo . Este processo apresenta-se preferencial para a produção de geradores $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ [4,5,6,7].

A metodologia desenvolvida por Sameh[7] baseia-se na digestão alcalina do alvo de U-Al com posterior purificação do ^{99}Mo por troca iônica. Realiza-se uma primeira separação em coluna contendo a resina aniônica AG1x8 e posteriormente o ^{99}Mo eluído é purificado empregando-se a resina Chelex-100, objetivo do presente trabalho. A purificação do ^{99}Mo consiste na formação do complexo molibdênio-tiocianato[8], sua retenção em resina quelante Chellex-100 e posterior eluição com solução de hidróxido de sódio. Este complexo possui coeficiente de distribuição alto ($K_d=10^4$) nesta resina, em relação aos contaminantes (outros produtos de fissão), o que significa que se consegue um fator de descontaminação grande, sem dificuldades[7].

II. PARTE EXPERIMENTAL

Reagentes. Solução Padrão de Mo 0,3 e 6,7mg/ml; Solução de tiocianato de potássio (KSCN) 6M; Soluções de sulfato de sódio (Na_2SO_3) 0,1g/ml; Solução de iodeto de potássio (KI) 8%; Ácido Sulfúrico 6M; Solução de hidróxido de sódio (NaOH) 1M; Solução de hidróxido de amônio (NH_4OH) 1M; Solução de sulfato de sódio (Na_2SO_4) 2M. Todos os reagentes utilizados foram de grau analítico, Merck.

A resina Chellex-100 utilizada tem como procedência a Bio-Rad.

Equipamentos. Espectrômetros de raios γ providos de dois detectores de Ge hiperpuro, Ortec e Camberra acoplados ao microcomputador gerenciados pelos programas Maestro II e Geniepc respectivamente.

III. PROCEDIMENTOS

Retenção do complexo $^{99}\text{Mo-SCN}$ e eluição do ^{99}Mo da resina quelante Chelex-100

Utilizaram-se colunas de vidro de diâmetro interno 1,4cm, contendo 6 gramas de resina Chelex-100.

Condicionalmento da resina Chelex-100. 50ml de H_2SO_4 2M + 2,5ml de KSCN 6M + 5ml de Na_2SO_3 (0,1g/ml) foram misturados e percolados pela resina numa vazão igual a 70 gotas por minuto.

Preparação da solução contendo o traçador. Em 1ml de sol. de Na_2MoO_4 (100 $\mu\text{g/ml}$), adicionou-se o traçador, ^{99}Mo , proveniente do Canadá, Nordion.

Solução simulada à proveniente da coluna AG1X8. 71gramas de Na_2SO_4 foram dissolvidos em 250ml de água destilada + 250ml de NH_4OH 1M.

Complexação. Num becker contendo 30ml da sol. oriunda da AG1X8(simulada) adicionou-se 1ml da sol. de Na_2MoO_4 contendo o traçador, 24ml de H_2SO_4 6M, 2,5ml de KSCN 6M, 2ml de KI 8% e 5ml de Na_2SO_3 (0,1g/ml), agitou-se. Após 30 minutos fez-se a percolação desta solução, denominada solução carga, pela resina Chelex-100.

Antes da percolação retirou-se 1ml da sol. carga para a contagem da atividade na região correspondente à 739,7 keV relativa ao ^{99}Mo .

Após a percolação, também foi retirado 1ml do efluente, para as contagens, com a finalidade de calcular-se a porcentagem de ^{99}Mo retido na resina Chelex-100.

Solução de lavagem. Adicionaram-se 50ml de H_2SO_4 2M, 2,5ml de KSCN 6M e 5ml de Na_2SO_3 (0,1g/ml), ao becker onde fez-se a complexação, agitou-se e em seguida percolou-se esta solução pela resina. Após a percolação desta solução de lavagem, retirou-se 1ml do efluente para a contagem.

Eluição. Empregaram-se 60ml de NaOH 1M para quebrar o complexo $^{99}\text{Mo-SCN}$, e eluir todo o ^{99}Mo da coluna. Foi coletado 1ml do eluido para as contagens, e para os cálculos da atividade de ^{99}Mo .

OBS.: As soluções carga, lavagem e de eluição foram percoladas pela coluna, com vazão aproximadamente igual a 70 gotas por minuto, por gravidade.

Curva de eluição do ^{99}Mo na resina Chelex-100

Neste estudo, o procedimento empregado segue o descrito no item anterior, com exceção da solução contendo o traçador. Utilizou-se aqui uma sol. de Na_2MoO_4 (0,3mg/ml). Percolaram-se 60ml de NaOH 1M e o eluido foi coletado em frações de 10ml, para a construção da curva de eluição.

Influência da temperatura da solução de NaOH, 1M, na eluição do ^{99}Mo

Com o objetivo de otimizar a eluição do

molibdênio, procederam-se estes estudos utilizando-se NaOH 1M, como eluente, em temperaturas ao redor de 50 - 60°C e 80°C[9]. Os resultados foram comparados com os obtidos anteriormente, quando se estudou o comportamento do complexo Mo-SCN isoladamente na resina Chelex-100, empregando-se o mesmo eluente porém em temperatura ambiente (aproximadamente 25°C). OBS.: Estes experimentos foram realizados sem as impurezas.

Influência das impurezas Iodo, Telúrio, Zircônio e Rutênio no processo de purificação do Molibdênio-99 em resina Chelex-100

Seguindo-se o mesmo procedimento, foram realizados estudos sobre o comportamento de cada impureza na resina Chelex-100, na ausência de ^{99}Mo e posteriormente em presença deste radionuclídeo.

Preparação das soluções contendo os traçadores.

- Molibdênio: Adicionou-se o traçador, ^{99}Mo , a 1ml de sol. de Na_2MoO_4 (0,3mg /ml).
- Iodo: À solução simulada como proveniente da coluna AG1x8, adicionou-se o traçador ^{131}I proveniente da Nordion. Sua meia-vida é 8 dias e seu pico característico aparece na região cuja $E_\gamma = 364,5$ keV.
- Telúrio: Utilizou-se como traçador o ^{123m}Te , (aproximadamente 1mg), obtido a partir da irradiação de TeO_2 e diluído em 2ml de NaOH 1M. Sua meia-vida é 119,7 dias e seu pico característico aparece na região cuja $E_\gamma = 159$ keV.
- Zircônio: Utilizou-se como traçador o ^{95}Zr , (aproximadamente 14mg), obtido a partir da irradiação de $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ e dissolvido em 3ml de água destilada. Sua meia-vida é 65 dias e seu pico característico aparece na região cuja $E_\gamma = 756,7$ keV.
- Rutênio: Utilizou-se como traçador o ^{103}Ru , (aproximadamente 300 μg), obtido a partir da irradiação de RuCl_3 e diluído sob aquecimento, em 3ml de HCl concentrado. Sua meia-vida é 39,6 dias e seu pico característico aparece na região cuja $E_\gamma = 497$ keV.

Comportamento do ^{99}Mo e das impurezas Iodo, Telúrio, Zircônio e Rutênio, na resina Chelex-100, utilizando-se massas teoricamente originadas na fissão de 1g de Urânio-235

Para a realização dos experimentos, considerou-se a fissão de 1g de ^{235}U , $t_i = 120$ horas e $t_e = 24$ horas, onde t_i = tempo de irradiação e t_e = tempo de espera, e de acordo com o programa Origen 2 versão 2.1[10], formam-se as seguintes massas dos elementos:

- Molibdênio = 6,86mg.
- Zircônio = 33,48mg.
- Rutênio = 8,44mg.
- Telúrio = 10,96mg.
- Iodo = 14,1mg.

O zircônio e o rutênio são praticamente insolúveis em solução alcalina[11], e portanto na primeira fase do processo onde ocorre a digestão alcalina do alvo com NaOH (3-6M), estes ficam concentrados na forma de um resíduo. Estes passam em pequena quantidade na filtração,

para a solução alcalina, onde encontra-se o Mo e os demais produtos de fissão solúveis, que será submetida ao processo de purificação do ^{99}Mo . Segundo Sameh[7], isto significa que mais de 95% dos produtos de fissão insolúveis como o zircônio, rutênio e os lantanídeos podem estar contidos no precipitado inicial.

A partir destas considerações, sugere-se que para os contaminantes zircônio e rutênio, ambos insolúveis em solução alcalina, apenas 5% destes chegam à fase de purificação, que tem como primeira etapa a resina aniônica AG1x8.

Portanto, após a digestão alcalina ter-se-iam na solução resultante 1,7mg de Zr e 0,42mg de Ru.

Para o Mo, Te e I espera-se que suas massas formadas na fissão de 1g de ^{235}U sejam totalmente dissolvidas na solução alcalina, devido a suas solubilidades na mesma. Portanto, estas massas seriam: 6,8mg de Mo, 10,96mg de Te e 14,1mg de I.

Considerando-se a metodologia desenvolvida por Sameh [7], na primeira fase do processo, onde se utiliza a resina aniônica AG1x8 são retidos o Mo, Ru, Zr e I, sendo que no efluente são eliminados o Te, Al, alcalinos, alcalinos terrosos, antimônio e IO_3^- (iodatos). Chegam à fase da resina Chelex-100 (purificação) o Mo, Ru, Zr e I.

Dados experimentais[12] mostraram que 98% de Zr e Te são separados do Mo na resina AG1x8, chegando à resina Chelex-100 apenas 2%. Nestes estudos, observou-se uma recuperação de 98% para o molibdênio. Diante destes dados, sugere-se que, se eventualmente ocorrerem problemas no processo, os contaminantes podem estar chegando na fase da resina Chelex-100 numa porcentagem ao redor de 5%, e encontrar-se-iam as seguintes massas para os mesmos: 85 μg de Zr, 21 μg de Ru, 547 μg de Te, 705 μg de I e 6,72mg de Mo.

Estes estudos foram realizados conforme procedimento experimental dos estudos anteriores, com exceção da preparação das soluções contendo os traçadores e também do NaOH 1M para eluição, usado em $T = 80^\circ\text{C}$.

Preparação das soluções contendo os traçadores

- **Molibdênio:** Adicionou-se o traçador ^{99}Mo , a 1ml de sol.de Na_2MoSO_4 (6,72mg/ml).
- **Iodo:** À solução simulada como proveniente da coluna AG1x8, adicionou-se o traçador ^{131}I da Nordion.
- **Zircônio:** Utilizou-se como traçador, o ^{95}Zr , obtido a partir da irradiação de 850mg de $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ e diluído em 100ml de água destilada. Retirou-se uma alíquota de 0,1ml para a realização dos experimentos.
- **Rutênio:** Utilizou-se como traçador, o ^{103}Ru , obtido a partir da irradiação de 25mg de RuCl_3 , e diluídos em 100ml de HCl concentrado. Desta solução retirou-se uma alíquota de 0,1ml.
- **Telúrio:** Não foi empregado nestes estudos pois a massa sugerida acima gera um precipitado preto, que inviabiliza a realização dos experimentos[13].

IV. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Retenção e Eluição do complexo $^{99}\text{Mo SCN}$ da resina quelante Chelex-100

A retenção média obtida foi $(99,6 \pm 0,54)\%$, valor este que expressa a grande afinidade do complexo pela resina.

As soluções carga, ao serem percoladas pelas colunas contendo a resina Chelex-100, promovem a formação de um anel laranja-avermelhado, na parte superior das colunas, característico do complexo Mo-SCN, indicando suas retenções. Após a percolação da solução de lavagem pela resina o halo permanece sem alteração. Porém, ao se percolar NaOH 1M, observa-se que o anel laranja-avermelhado característico desaparece e a resina volta a ficar completamente branca, indicando-se assim que o complexo foi quebrado e o molibdênio eluído. Isto é confirmado pelos resultados onde $(96,8 \pm 2)\%$ do ^{99}Mo envolvido no processo foi recuperado.

Pode-se observar que o método aqui empregado, para a purificação do ^{99}Mo é reprodutível, pois o desvio padrão da média foi mínimo e também, quanto à eluição do ^{99}Mo da coluna, verificou-se pela eluição média que os resultados foram muito bons. Este estudo confirmou a grande especificidade desta resina no processo.

Curva de eluição do ^{99}Mo na resina Chelex-100

Verifica-se pela Figura 1 que 40ml de NaOH 1M são suficientes para quebrar o complexo Mo-SCN e eluir praticamente todo o ^{99}Mo da resina.

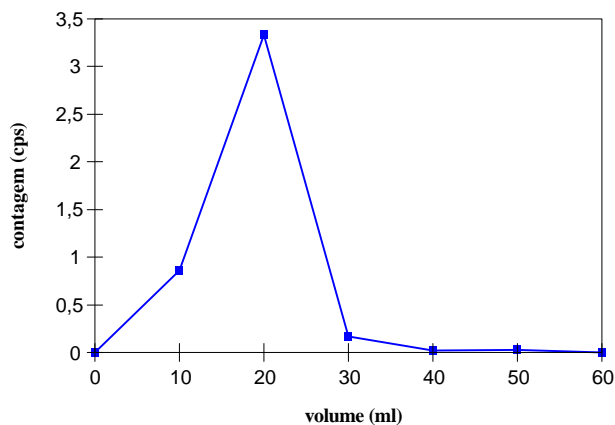


Figura 1. Curva de Eluição do ^{99}Mo na Resina Chelex-100.

Influência da temperatura da solução de NaOH, 1M, na eluição do ^{99}Mo

Com a solução de NaOH 1M em temperatura ambiente, eluiu-se $(96,8 \pm 2,1)\%$ e quando se usou a solução em $50-60^\circ\text{C}$ a eluição média obtida foi $(95,8 \pm 2,6)\%$ e para a solução em 80°C obteve-se eluição média de $(99,6 \pm 0,3)\%$. Portanto comparando-se os resultados, para temperatura ambiente e entre $50-60^\circ\text{C}$, não houve alteração significativa na eluição, porém para temperatura de 80°C verificou-se uma melhor eluição do ^{99}Mo .

Comportamento das impurezas iodo, telúrio, rutênio e zircônio na resina Chelex-100.

Quanto ao comportamento do iodo-131, em resina quelante Chelex-100, na ausência de molibdênio-99, verifica-se por meio dos resultados apresentados na Tabela 1, que $(84,4 \pm 1,4)\%$ sai no efluente da solução de carga. O restante sai, no passo seguinte, quando a resina é lavada, atingindo-se eluição média igual a $(99,4 \pm 0,8)\%$.

Verifica-se ainda pela Tabela 1, que $(43,6 \pm 2,5)\%$ do telúrio sai no efluente da solução de carga, outra pequena parte sai no efluente da lavagem e $(49,4 \pm 2,7)\%$ sai na eluição, totalizando uma eluição média igual a $(99,2 \pm 0,76)\%$.

TABELA 1. Comportamento das impurezas iodo, telúrio, rutênio e zircônio na resina Chelex-100.

| Contaminante | Efluente da carga % | Efluente da lavagem % | Efluente da eluição % |
|--------------|---------------------|-----------------------|-----------------------|
| Iodo-131 | $(84,4 \pm 1,4)$ | $(14,5 \pm 1,6)$ | $(0,43 \pm 0,96)$ |
| Telúrio-123m | $(43,6 \pm 2,5)$ | $(6,1 \pm 2,1)$ | $(49,4 \pm 2,7)$ |
| Rutênio-103 | $(84,9 \pm 0,8)$ | $(8,1 \pm 0,1)$ | $(1,8 \pm 0,1)$ |
| Zircônio-95 | $(90,2 \pm 0,4)$ | $(7,3 \pm 0,4)$ | $(0,6 \pm 0,5)$ |

No estudo do comportamento do rutênio na resina Chelex-100, observa-se que mais de 90% do ^{103}Ru é eliminado nos efluentes da solução carga e da lavagem, atingindo-se eluição média igual a $(95 \pm 0,5)\%$.

Quanto ao comportamento do zircônio sozinho na resina Chelex-100, verifica-se também pela Tabela 1 que acima de 95% deste nuclide foi eliminado nos efluentes da solução de carga e da lavagem, conseguindo-se uma eluição média de $(98 \pm 0,1)\%$.

Portanto, nas condições experimentais estudadas nota-se que estes elementos não apresentam afinidade pela resina sendo eliminados.

Comportamento de cada contaminante na Chelex-100 e sua influência na retenção e recuperação do ^{99}Mo .

Observa-se pela Tabela 2, que o comportamento do ^{131}I , em presença do ^{99}Mo , na resina Chelex-100 foi aproximadamente o mesmo obtido no estudo anterior, alcançando-se uma eluição total média igual a $(99,1 \pm 0,8)\%$.

Quanto ao ^{99}Mo , verificou-se que a presença do ^{131}I não interfere, de maneira significativa, em sua complexação com os íons tiocianato, nem em sua retenção na resina quelante Chelex-100. Obteve-se a retenção média de $(96,2 \pm 1,1)\%$ e a eluição média igual a $(93,9 \pm 1,7)\%$, valores estes, que apesar de estarem abaixo daqueles obtidos, quando se estudou a retenção e a eluição do complexo Mo-SCN na ausência de qualquer contaminante, podem ser considerados significativos para o processo.

TABELA 2. Comportamento de cada contaminante na Chelex-100 e sua influência na retenção e recuperação do ^{99}Mo .

| Contaminante no Efluente da carga + lavagem (rejeito) % | Retenção do ^{99}Mo na Chelex-100 % | % do contaminante no eluido final de ^{99}Mo | % de ^{99}Mo no eluido final |
|---|--|---|---------------------------------------|
| $^{131}\text{I}=(99,1\pm 0,8)$ | $(96,2\pm 1,1)$ | $^{131}\text{I}=(0,45\pm 0,2)$ | $(93,9\pm 1,7)$ |
| $^{123\text{m}}\text{Te}=(16,4\pm 1,7)$ | $(98,2\pm 1)$ | $^{123\text{m}}\text{Te}=(29\pm 1,5)$ | $(95,1\pm 2,6)$ |
| $^{103}\text{Ru}=(97\pm 0,6)$ | $(99\pm 0,2)$ | $^{103}\text{Ru}=(2,2\pm 0,6)$ | $(88,4\pm 1,5)$ |
| $^{95}\text{Zr}=(80,3\pm 0,7)$ | $(97,7\pm 0,1)$ | $^{95}\text{Zr}=(14,3\pm 0,4)$ | $(91\pm 0,6)$ |

Observa-se também nesta Tabela 2, nos estudos empregando-se o $^{123\text{m}}\text{Te}$, com carregador, como traçador, que a separação deste foi de apenas $(16,4 \pm 1,7)\%$, permanecendo $(29 \pm 1,5)\%$ no eluido final, juntamente com o ^{99}Mo recuperado. Acredita-se que estes valores obtidos são decorrentes do fato de o telúrio não estar livre de carregador e apesar de ter-se empregado uma massa muito pequena, observou-se a formação de um pequeno precipitado preto, característico da reação de telúrio com iodeto de potássio (KI) formando $[\text{Te I}_6]^{2-}$, e posteriormente reduzido pelo sulfito de sódio (Na_2SO_3) a telúrio elementar. Esta reação é característica para a determinação de telúrio [13], e portanto, dependendo da massa de telúrio presente, este interferirá na formação do complexo Mo-SCN, pois os agentes redutores presentes também são consumidos na reação com telúrio. Porém considerando-se a metodologia empregada neste trabalho, isto não deverá ocorrer no processo, porque o telúrio presente é originado na fissão e portanto livre de carregador, devendo ser eliminado na primeira fase do processo onde se utiliza a resina aniônica AG1x8. De acordo com o exposto ficou inviabilizado seu emprego nos experimentos realizados, quando todos os contaminantes foram analisados juntamente com o ^{99}Mo .

Ainda pela Tabela 2 verifica-se que, na purificação do ^{99}Mo em presença de Ru, a retenção do complexo Mo-SCN não foi alterada, sendo esta $(99 \pm 0,2)\%$. Conseguiu-se boa separação deste contaminante, igual a $(97 \pm 0,6)\%$, permanecendo junto ao Mo recuperado uma pequena fração, igual a $(2,2 \pm 0,6)\%$. Quanto a eluição do ^{99}Mo , $(88,4 \pm 1,5)\%$ deste foi recuperado.

Analisando-se os demais resultados desta Tabela 2, constatou-se que a presença do ^{95}Zr na purificação do ^{99}Mo , não altera significativamente a retenção do complexo Mo-SCN, a qual foi $(97,7 \pm 0,1)\%$. Quanto à separação deste contaminante, esta caiu para $(80,3 \pm 0,7)\%$ e $(14,3 \pm 0,4)\%$ dele manteve-se junto ao ^{99}Mo eluido da resina. A recuperação do ^{99}Mo foi $(91 \pm 0,6)\%$, considerada satisfatória.

Comportamento do ^{99}Mo juntamente com os contaminantes ^{131}I , ^{95}Zr e ^{103}Ru , na Chelex-100, utilizando-se as massas teoricamente originadas na fissão de 1g de ^{235}U .

Constata-se pela Tabela 3 que realizando-se o processo de purificação do ^{99}Mo utilizando-se as massas teoricamente formadas na fissão de 1g de ^{235}U , que a retenção diminuiu para $(93,9 \pm 0,5)\%$ sendo ainda satisfatória e a recuperação do ^{99}Mo foi $(91,9 \pm 0,3)\%$.

TABELA 3. Comportamento do ^{99}Mo juntamente com os contaminantes ^{131}I , ^{95}Zr e ^{103}Ru , na Chelex-100, utilizando-se as massas teoricamente originadas na fissão de 1g de ^{235}U .

| Radioisótopos | % do radioisótopo nos efluentes (rejeito) | Retenção na Chelex-100 % | % do radioisótopo no eluido final |
|---------------|---|--------------------------|-----------------------------------|
| Molibdênio-99 | $(6,1 \pm 0,5)$ | $(93,9 \pm 0,5)$ | $(91,9 \pm 0,3)$ |
| Iodo-131 | $(99,5 \pm 0,8)$ | $(0,5 \pm 0,8)$ | 0 |
| Rutênio-103 | $(99,9 \pm 0,2)$ | $(0,1 \pm 0,2)$ | $(0,03 \pm 0,08)$ |
| Zircônio-95 | $(98,6 \pm 1,1)$ | $(1,4 \pm 1,1)$ | $(1,2 \pm 0,2)$ |

Obteve-se para impureza iodo $(99,5 \pm 0,8)\%$ de separação, ficando esta no rejeito, não sendo portanto encontrado no eluido final. Já para o rutênio, separou-se $(99,9 \pm 0,2)\%$ no rejeito inicial, permanecendo no eluido final $(0,03 \pm 0,08)\%$.

Para a impureza zircônio $(98,6 \pm 1,1)\%$ ficou nos efluentes (rejeito), e junto ao ^{99}Mo recuperado apenas $(1,2 \pm 0,2)\%$. Verifica-se portanto boa recuperação do ^{99}Mo na solução final, $(91,9 \pm 0,3)\%$, com baixo teor de contaminantes.

A influência dos contaminantes no resultado de recuperação do ^{99}Mo era esperada; sendo este valor compatível com os rendimentos práticos obtidos no processo desenvolvido por Sameh[7], acima de 80%.

Os valores de retenção e de recuperação do ^{99}Mo bem como os níveis de descontaminação atingidos são satisfatórios e justificam o emprego da Chelex-100 no processo.

A Figura 2 ilustra com clareza as porcentagens dos contaminantes que permanecem junto ao ^{99}Mo recuperado, após a purificação usando a resina Chelex-100 e evidencia a excelente descontaminação obtida, quando utilizaram-se as massas calculadas a partir da fissão de 1g de ^{235}U .

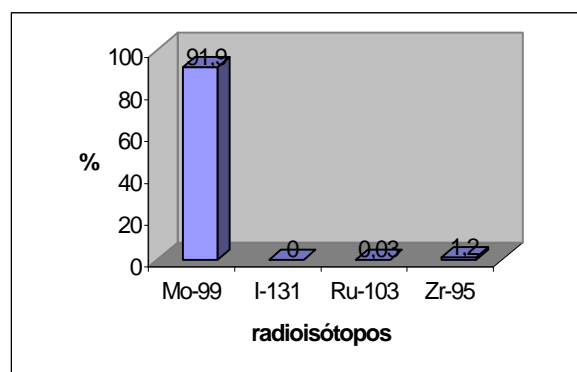


Figura 2. Porcentagem dos contaminantes no eluido final de ^{99}Mo .

Correlação entre os Limites obtidos e os Teóricos[6,14,15], em kBq do Contaminante/MBq de ^{99}Mo .

Analisando a Tabela 4, pode-se constatar que os valores obtidos para os teores dos contaminantes em relação ao ^{99}Mo recuperado no processo encontram-se dentro dos limites estabelecidos pela literatura[6,14,15], para posterior utilização do molibdênio na preparação de geradores de ^{99m}Tc .

TABELA 4. Correlação entre os Limites obtidos e os Teóricos[6,14,15], em kBq do Contaminante/MBq de ^{99}Mo (experimentos Tabela 3).

| Radioisótopos | Valores obtidos (kBq)/ ^{99}Mo (MBq) | Limites Teóricos (kBq)/ ^{99}Mo (MBq) |
|--|---|--|
| $^{131}\text{I} : ^{99}\text{Mo}$ | 0 | 5×10^{-2} |
| $^{103}\text{Ru} : ^{99}\text{Mo}$ | $0,1 \times 10^{-3}$ | 5×10^{-2} |
| $^{96}\text{Nb} - ^{95}\text{Zr} : ^{99}\text{Mo}$ | $2,7 \times 10^{-3}$ | 6×10^{-3} |

V. CONCLUSÕES

Com relação ao comportamento do complexo $^{99}\text{Mo-SCN}$ na Chelex-100, os valores de retenção confirmaram sua grande afinidade com a resina.

A temperatura de 80°C para a solução eluente (NaOH , 1M) demonstrou ser mais eficiente na eluição do ^{99}Mo .

Quando o ^{99}Mo está em presença dos principais contaminantes oriundos da fissão do ^{235}U (iodo, rutênio, zircônio e telúrio) obtém-se por meio do método estudado, boa separação, garantindo-se a pureza do ^{99}Mo , como visto na tabela 3.

Pode-se ainda concluir, que os teores dos contaminantes encontrados na solução final de ^{99}Mo , encontram-se dentro dos limites estabelecidos para uso na preparação de geradores de ^{99m}Tc .

AGRADECIMENTOS

Agradecemos ao CNPq pelo apoio através de bolsa de mestrado.

REFERÊNCIAS

[1] Jeffries, J. F.; **Nonisotopic labelling**. In: Colombetti, L. G.; ed. Principles of radiopharmacology v-1, p. 27-43 Boca Raton, Fl., CRC, 1979.

[2] Kenna, B. T. **The search for technetium in nature**. J. Chem. Educ., 39: 436-42, 1962.

[3] Lebowitz, E., Richards, P. **Radionuclides Generator Systems**. Semin. Nucl. Med., 4(3): 257-68, 1974.

[4] Legrand, J.; Perolat, J. P.; Lagoutine, F.; Le Gallic, Y. **Table de radionucléides**. Saclay, Commissariat a L' Energie Atomique, 1975.

[5] Mestnik, S. A. C. **Separação de ^{99}Mo do ^{132}Te usando Tiouréia como agente complexante**. Aplicação à Separação do ^{99}Mo dos produtos de fissão (Tese de Doutorado, Pub. - IPEN - 248), 1989.

[6] Subramanian, G.; Me Afee, J. G. **Radioisotope Generators**. In: Tubis, M. Worf, W.; eds. Radiopharmacy. New York, YK, John Wiley cap.11, p. 255-77, 1976.

[7] Sameh, A. Ali.; Hans, S. Ache. **Production Techniques of Fission Mo-99**. Nuclear Research Center Karlsruhe, Institute of Radiochemistry, Karlsruhe, FRG, Radiochemies Acta 41: 65-72, 1987.

[8] Busev, A.I. **Analytical Chemistry of Molybdenum** S. Monson, Jerusalem, p. 15-19; 70-77; 107-109; 159-164, 1964.

[9] Marqués, R.O.; Cristini, P.R.; Marziale, D.P.; Furnari, E.S.; Fernandez, H.O **Instalation para produccion de ^{99}Mo partiendo de produtos de fisión** XV Reunión Cientif. A A T. N.; S.C. Bariloche, Argentina, 1987.

[10] **Código de Computador Origen 2 versão 2.1** (8-1-91); Oak Ridge National Laboratory.

[11] Hodgman, C. D. ; **Handbook of Chemistry and Physics** 38th edition, Chemical Rubber Publishing Co. Cleveland, Ohio, 1956.

[12] Fernandes, L. ; Moraes, V.; **Aplicação da Técnica de Troca Iônica no Processo de Purificação do ^{99}Mo** Anais IV CGEN, 1994.

[13] Vogel, A. I. **Química Analítica Qualitativa**; Ed. Mestre Jou, São Paulo, 5^a ed., p. 569-573, 1981.

[14] Atomic Energy of Canada Limited, **Product Specification ^{99}Mo (fission)** Radiochemical Company, Isotopic Division, 413 March Road, P.O.Box 13500, Kanata, Ontario, Canada K2K 1X8 (1996).

[15] Atomic Energy Corporation of South Africa Limited, **Product Specification ^{99}Mo (fission)** P.O.Box 582, Pretoria 0001, South Africa (1996).

ABSTRACT

The present work is part of a chemical process, based on Sameh's methodology, for the production of fission ^{99}Mo , used for the preparation of ^{99m}Tc generators. The purpose of this work is the purification of fission ^{99}Mo employing the chelating resin Chelex-100 (Bio-Rad), due to the high distribution coefficient (10^4) of the molybdenum when compared to the impurities (other fission products). This fact depends on the complexation of the molybdenum with thiocyanate ions producing a stable complex which is retained by the Chelex-100 due to the nitrilodiacetate groups present in this resin.

