

PREPARAÇÃO DO GEL DE MOLIBDATO DE ZIRCÔNIO PARA USO NOS GERADORES DE ^{99m}Tc : DEFINIÇÃO DO MÉTODO DE PREPARAÇÃO A NÍVEL DE LABORATÓRIO

João A. Osso Jr., Ana Lúcia V. P. Lima, Nestor C. da Silva, Renata C. Nieto e Adriana C. Velosa

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

RESUMO

O IPEN desenvolve um projeto de preparação de um gel de molibdato de Zircônio para uso nos geradores de ^{99}Mo - ^{99m}Tc . O ^{99m}Tc é o radioisótopo mais utilizado nos exames de diagnóstico na especialidade de Medicina Nuclear e atualmente os geradores são preparados a partir de ^{99}Mo importado, produzido pela fissão do ^{235}U . A produção do ^{99}Mo pela reação $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ se tornou possível após o aumento da potência do Reator IEA-R1 do IPEN de 2 para 5 MW. Este trabalho descreve o método de preparação do gel de molibdato de Zircônio que será utilizado nos geradores de ^{99}Mo - ^{99m}Tc . O gel é preparado pela reação química entre o Mo, na forma de MoO_3 irradiado, com o Zr na forma de $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$. Após a reação, o gel é filtrado, seco e finalmente quebrado com solução salina. Este produto é então carregado em colunas de vidro para o consequente uso como gerador de ^{99m}Tc . Os resultados obtidos demonstram a qualidade do gel preparado a nível de laboratório e dos geradores avaliados

Palavras-chave: ^{99}Mo , gerador de ^{99m}Tc , medicina nuclear, produção de radioisótopos

I. INTRODUÇÃO

Um dos radioisótopos de tecnécio, o ^{99m}Tc , é o traçador radioativo mais utilizado em todo o mundo para diagnósticos realizados na Medicina Nuclear devido às suas características físicas de decaimento favoráveis e pela sua distribuição na forma de um gerador de ^{99}Mo - ^{99m}Tc . O ^{99}Mo pode ser produzido pela fissão do urânio ou pela reação $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ [1-3] que ocorrem em um reator nuclear. Atualmente o IPEN importa o ^{99}Mo , produzido pela fissão do urânio, prepara os geradores com tecnologia própria, e desenvolve um projeto de nacionalização da produção deste radioisótopo, tendo optado pela reação nuclear (n,γ) no reator IEA-R1 do IPEN, que se tornou possível após o aumento da potência de 2 para 5 MW.

Este trabalho descreve o método de preparação do gel de molibdato de Zircônio (MoZr) que será utilizado nos geradores de ^{99}Mo - ^{99m}Tc . Ao contrário do ^{99}Mo de fissão, o gerador preparado com o ^{99}Mo proveniente da reação (n,γ) não pode utilizar a técnica de coluna cromatográfica contendo alumina, e a alternativa é o preparo de um composto que contenha o Mo e que tenha

propriedades de troca iônica. O gel de molibdato de Zircônio atende estas características, e é preparado pela reação química entre o Mo, na forma de MoO_3 irradiado, com o Zr na forma de $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$. Após a reação, o gel é filtrado, seco e finalmente quebrado com solução salina. Este produto é então carregado em colunas de vidro para o consequente uso como gerador de ^{99m}Tc .

Os resultados obtidos são expressos pelo balanço de massa e de radioatividade do processo, pela caracterização do gel e pelo desempenho dos geradores de ^{99m}Tc .

II. PARTE EXPERIMENTAL

Preparo do Gel de MoZr

A preparação do gel de Mo-Zr seguiu a princípio os procedimentos adotados na China[3], e foi desenvolvida primeiro com MoO_3 não irradiado, com quantidades a nível de traçador de ^{99}Mo e com o MoO_3 irradiado no Reator IEA-R1 do IPEN.

O Mo reage com o Zr, na forma de $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ em condições ideais de concentração, pH, temperatura e

agitação. O gel é então filtrado, seco e finalmente quebrado com solução salina. Este produto pode ser carregado nas colunas de maneira seca ou úmida.

Os parâmetros estudados na preparação do gel de MoZr foram: ordem de adição dos reagentes, concentração dos reagentes, pH das soluções de Mo e Zr, ajuste de pH após a reação, tempo de espera antes da filtração, tempo de secagem do gel, solução para a quebra do gel e tipo de gerador preparado com o gel.

Irradiações

Todas as irradiações foram realizadas no reator IEA-RI, do IPEN - CNEN/SP, nas potências de 2MW e 5MW. Todos os alvos foram colocados em porta alvos de alumínio chamados “coelhos”, cujo diâmetro é aproximadamente 2,1 cm e a altura de 7 cm.

Preparo dos Geradores de ^{99}Mo - ^{99m}Tc

Os geradores de ^{99}Mo - ^{99m}Tc foram preparados usando colunas de vidro similares às do gerador de ^{99}Mo de fissão, contendo uma placa de vidro porosa. Inicialmente foram colocados 1,0 g de Al_2O_3 (para retenção de Mo e ajuste de pH) e então de 3 a 6 g do gel de MoZr úmido ou seco. Após o crescimento do ^{99m}Tc , a eluição foi feita com frascos contendo solução salina. O eluído, contendo o ^{99m}Tc foi recolhido em frascos previamente evacuados.

Parâmetros de Reação Analisados

Parâmetros de Processo

Alguns indicativos da qualidade da produção do gel foram observados: coloração do gel, velocidade de filtração, velocidade de secagem e uniformidade da quebra.

Balancos de Massa e de Radioatividade

O balanço de massa da reação foi feito pela pesagem precisa dos reagentes e do gel seco. O balanço de radioatividade foi feito pela medida da atividade de ^{99}Mo em um calibrador de dose da Capintec, modelo CRC - 10BC usando uma blindagem de chumbo para eliminar as contagens de ^{99m}Tc .

Caracterização do Gel

Identificação da Estrutura : determinada através de difração de raios-X com a radiação alfa CuK ;

Determinação do Tamanho de Partículas:

A determinação do tamanho de partículas do gel foi feita usando um sistema de peneiras, pesando as peneiras antes e depois do processo de peneiração

Determinação da Quantidade de Mo, Zr e de Impurezas:

A determinação da quantidade de Mo, Zr e impurezas foi feita inicialmente por análise de ativação neutrônica usando o Reator IEA-R1. Métodos de determinação de Mo e Zr foram desenvolvidos usando a espectroscopia UV-visível. O equipamento utilizado foi o

DMS-80 da Intralab, e Mo foi determinado pela complexação com tiocianato e Zr pela complexação com alaranjado de xilenol.

Desempenho dos Geradores de ^{99m}Tc

Determinação do perfil e rendimento de eluição de ^{99m}Tc :

As amostras eluídas dos geradores tipo gel foram contadas no calibrador de dose da Capintec para medida de ^{99m}Tc . Destes resultados foram levantadas as curvas de eluição do ^{99m}Tc e calculados os rendimentos de eluição.

Controle de Qualidade do ^{99m}Tc

O ^{99m}Tc eluído dos geradores tipo gel foram submetidos a varios testes de controle de qualidade: pureza radioquímica, pureza química, pureza radionuclídica e medida do pH, para comprovação da eficiência do processo.

III. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Preparo do Gel de MoZr

Os estudos até aqui realizados chegaram ao seguinte processo para preparo do gel de MoZr a nível de laboratório:

- Dissolução do MoO_3 com NaOH 2M e ajuste de pH a 4,0 com HNO_3 2M
- Dissolução do $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ com H_2O
- Adicionar a solução de Mo à de Zr, já aquecida a 50°C , lentamente
- Agitar por 10 minutos
- Ajustar o pH a 4,5 com NaOH 2M
- Agitar por 15 minutos
- Filtrar
- Secar a 105°C
- Quebrar o gel com solução salina e H_2O_2

Nestas condições o método é reprodutível, com filtração e secagem rápidas e homogeneidade de quebra do gel.

Balancos de Massa e de Radioatividade

O balanço de massa do processo variou entre + 11% e - 2%. Os valores positivos foram encontrados quando o gel não estava bem seco.

O balanço de radioatividade em média foi de - 5%.

Caracterização do Gel

Identificação da estrutura :

A difração de raios-X mostrou que o gel de MoZr apresenta uma fase amorfa, como esperado.

Determinação do tamanho de partículas:

A Figura 1 mostra uma típica distribuição do tamanho de partículas do gel de MoZr, que corresponde ao esperado.

Determinação da quantidade de Mo, Zr e de impurezas:

As análises do gel feitas por ativação neutrônica mostraram que a única impureza presente é Háfnio, com percentual de em média 0,62%. Esta impureza, que não é descrita em literatura, aparece como impureza inicialmente no reagente $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$. Durante a eluição dos geradores preparados com o gel, não foi detectada a presença de Hf.

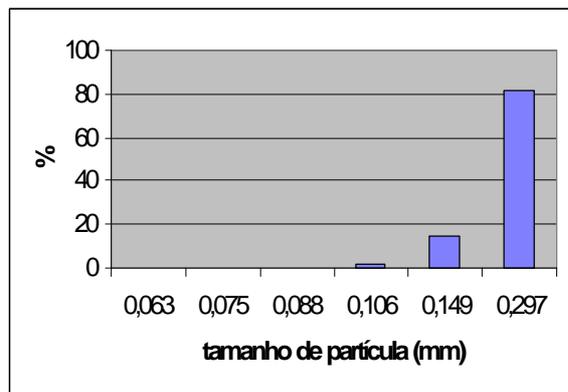


Figura 1. Distribuição do tamanho de partículas do gel de MoZr

As amostras de gel foram analisadas também para quantificar o Mo e o Zr presentes. Os resultados obtidos foram, em média: 26,16% de Mo e 26,95% de Zr. Estes valores indicam que: a) o gel preparado contém cerca de 260 mg de Mo por grama de gel e b) o gel deve ter a fórmula estequiométrica $MoZrNa_2O_6$, que é a composição mais adequada para o seu uso.

Desempenho dos Geradores de ^{99m}Tc

Determinação do Perfil e Rendimento de Eluição de ^{99m}Tc :

A Figura 2 mostra a curva de eluição típica de um gerador de ^{99}Mo - ^{99m}Tc preparado com o gel de MoZr. Observa-se que 6 mL de eluente retiram mais de 80% do ^{99m}Tc , chegando a mais de 95% em 12 mL. Estes números se mantêm para geradores preparados com gel seco ou úmido. Considerando a quantidade total de ^{99}Mo presente no gerador, a eficiência de eluição é maior que 75% para geradores com gel seco, e maiores que 85% para geradores com gel úmido. Estes resultados são sempre superiores aos obtidos na produção rotineira da China.

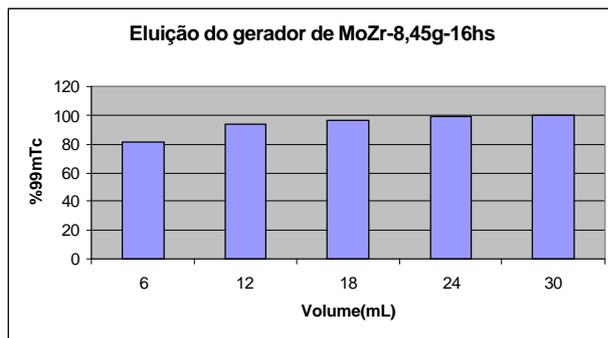


Figura 2. Curva de eluição de ^{99m}Tc para o gerador preparado com o gel de MoZr

Controle de Qualidade do ^{99m}Tc

O ^{99m}Tc eluído dos geradores preparados com o gel de MoZr foi aprovado em todos os testes do controle de qualidade. A pureza radioquímica foi superior a 99,4% (TcO_4^-), a impureza radionuclídica de ^{99}Mo manteve-se menor que $10^{-4}\%$, os níveis químicos de Mo e Zr abaixo dos níveis permissíveis e o pH entre 5 e 6.

IV. CONCLUSÕES

Foi definido com sucesso um método de preparação do gel de MoZr para uso nos geradores de ^{99m}Tc a nível de laboratório. O método é eficiente e reproduzível, obtendo-se o gel nas especificações necessárias. Os resultados da caracterização do gel e do desempenho dos geradores de ^{99m}Tc comprovaram a sua qualidade, compatível com a dos geradores preparados com ^{99}Mo de fissão, produzidos rotineiramente no IPEN.

Um experimento final foi realizado para comprovar os resultados obtidos. Conjuntos de reativos de MDP e enxofre coloidal foram marcados com ^{99m}Tc eluído de geradores preparados com o gel de MoZr, e o rendimento de marcação foi idêntico ao obtido com o ^{99m}Tc de fissão, ou seja, maior que 98% para o MDP e 95% para S coloidal.

AGRADECIMENTOS

Este trabalho está sendo financiado pela FINEP, através de seu programa PRONEX. Agradecemos também à FAPESP, pela concessão de uma bolsa de iniciação científica.

REFERÊNCIAS

[1] Boyd R. E (1986), IAEA - SR - 131/11.

[2] .Y. F. Shafiq, Z. M. Yousif, "Characteristics and Behavior of a $^{99}Mo/^{99m}Tc$ Generator using irradiated

Titanium Molybdate as column matrix"; J. Radioanal. Nucl. Chem., letters 199 (3) 173-181 (1995).

[3] **"Development of Alternative technologies for Gel-Type Chromatographic Tc-99m Generator"**; IAEA's Research Co-ordination Meeting, 3-6 May, Vienna, Austria, 1994.

ABSTRACT

IPEN develops a project concerning the preparation of a gel of Zirconium Molybdate for use in the generators of ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ is the most used radioisotope in Nuclear Medicine diagnosis procedures and nowadays the generators are being prepared with imported ^{99}Mo , produced by ^{235}U fission. The production of ^{99}Mo by the $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ reaction is now possible because of the power upgrade of IPEN's IEA-R1 reactor, from 2 to 5 MW. This work describes the preparation method of Zirconium Molybdate gel that will be used in the ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ generators. The gel is prepared by the chemical reaction between Mo, in MoO_3 form, and Zr, in $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ form. After the reaction, the gel is filtered, dried and cracked with saline solution. The product is then loaded into glass columns for use as $^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator. The results showed the good quality of the gel prepared at laboratory level and of the generators evaluated.