

IMPUREZAS RADIONUCLÍDICAS NA ATIVAÇÃO DO MoO<sub>3</sub> E DO GEL DE MoZr PARA A  
PRODUÇÃO DE <sup>99m</sup>Mo.

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

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

RESUMO

O radioisótopo mais utilizado na Medicina Nuclear é o <sup>99m</sup>Tc, na forma do gerador <sup>99</sup>Mo - <sup>99m</sup>Tc. O <sup>99</sup>Mo pode ser produzido por diversas reações nucleares em reatores e ciclotrons. A produção em um ciclotron não é viável técnica e economicamente. No reator nuclear a produção pode ser feita de duas maneiras: pela fissão do urânio ou pela reação <sup>98</sup>Mo(n,γ)<sup>99</sup>Mo. No Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares está sendo desenvolvido um projeto para a produção de <sup>99</sup>Mo pela ativação de Mo e preparo de geradores tipo gel MoZr. Neste trabalho foram medidas as impurezas radionuclídicas provenientes da ativação do MoO<sub>3</sub> e do gel de MoZr, que são as duas possíveis maneiras de preparação do gel de MoZr, assim como a pureza radionuclídica do <sup>99m</sup>Tc eluído dos geradores preparados das duas maneiras. Os resultados obtidos são comparados também com os geradores preparados a partir do <sup>99</sup>Mo produzido na fissão do U.

**Palavras-chaves:** gel MoZr, gerador de <sup>99</sup>Mo, <sup>99m</sup>Tc, produção de radioisótopos.

I. INTRODUÇÃO

O radioisótopo mais utilizado na Medicina Nuclear é o <sup>99m</sup>Tc, pois suas características físicas de decaimento são favoráveis para as técnicas de diagnóstico: meia-vida curta (T<sub>1/2</sub> = 6,02 h) e decaimento emitindo um único raio-γ de 141 keV, energia favorável para o uso com os detectores utilizados na Medicina Nuclear. [1,2,3,5]

Uma outra vantagem é a sua disponibilidade na forma de um gerador à classe médica, onde o <sup>99</sup>Mo decai com a meia-vida física de 66 horas para o <sup>99m</sup>Tc. [1,2,3,5]

O Mo-99 pode ser produzido por diversas reações nucleares em reatores e ciclotrons. A produção em ciclotron é possível pela irradiação do Mo altamente enriquecido em <sup>100</sup>Mo com prótons ou dêuterons. A desvantagem é o alto custo e a obtenção do <sup>99</sup>Mo com baixa atividade específica. [9]

No reator nuclear a produção pode ser feita de duas formas, pela fissão do <sup>235</sup>U ou pela reação do <sup>98</sup>Mo (n, γ) <sup>99</sup>Mo. No processo de fissão do <sup>235</sup>U, obtêm-se o <sup>99</sup>Mo com alta atividade específica, mas gera um número grande de radioisótopos de fissão, levando a uma separação química complexa e purificação do <sup>99</sup>Mo. Este processo ainda apresenta altas doses de radiação, alto custo e necessidade de um gerenciamento dos rejeitos tóxicos. [8,9]

O processo da ativação do Mo natural ou enriquecido em <sup>98</sup>Mo pela reação (n, γ) produz <sup>99</sup>Mo com baixa atividade específica, maiores volumes de eluição de <sup>99m</sup>Tc e menor quantidade de impurezas, consequentemente gerando uma quantidade menor de rejeitos. [7]

Quando o <sup>99</sup>Mo é produzido pela reação (n, γ), a técnica de preparo do gerador mais empregada é a eluição de um gel de Mo. Esta técnica está sendo estudada em alguns países como o Vietnã, Índia, Austrália e China [6]. Desta técnica, dois tipos de gel mostraram bons resultados: o de MoZr e o de MoTi. O gel preparado com Zr mostra um desempenho melhor devido a uma contaminação menor do <sup>99m</sup>Tc eluído com <sup>99</sup>Mo [4]. Quanto à irradiação, duas técnicas podem ser empregadas: irradiando MoO<sub>3</sub> e posterior preparo do gel ("gel pós-formado") e preparando-se o gel com MoO<sub>3</sub> a frio e posterior irradiação ("gel pré-formado").

Este trabalho estuda as impurezas radionuclídicas provenientes da ativação do MoO<sub>3</sub> e do gel de MoZr, assim como a pureza radionuclídica do <sup>99m</sup>Tc eluído dos geradores preparados das duas maneiras e comparação dos resultados obtidos com o <sup>99</sup>Mo produzido pela fissão do <sup>235</sup>U e com os geradores preparados a partir deste.

## II. PARTE EXPERIMENTAL

### Preparo do gel pré-formado e do gel pós-formado

O gel de MoZr é preparado pela reação do  $\text{MoO}_3$  frio (gel pré-formado) ou irradiado (gel pós-formado) com  $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$  em condições ótimas de pH, temperatura e agitação. Após a reação, o gel é filtrado, seco e finalmente quebrado com solução salina.

### Irradiações

Todas as irradiações foram realizadas no reator IEA-RI, do IPEN - CNEN/SP, nas potências de 2MW e 5MW, num período de 1h à 8h. 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.

Foram irradiados alvos de  $\text{MoO}_3$  de diferentes fabricantes: **ALDRICH CHEMICAL COMPANY E FLUKA CHEMIKA**, para a preparação do gel pós-formado e para comparar a pureza química dos dois fabricantes. Alvos do gel de MoZr pré-formado foram irradiados nas mesmas condições.

### Preparo dos Geradores de $^{99}\text{Mo}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$

Os geradores de  $^{99}\text{Mo}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$  foram preparados usando colunas de vidro similares às do gerador de  $^{99}\text{Mo}$  de fissão, contendo uma placa de vidro porosa. Inicialmente foram colocados 1,0 g de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (para retenção de Mo e ajuste de pH) e então de 3 a 6 g do gel de MoZr pré-formado ou pós-formado. Após o crescimento do  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , a eluição foi feita com frascos contendo solução salina. O eluído, contendo o  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  foi recolhido em frascos previamente evacuados.

### $^{99}\text{Mo}$ de fissão

Da produção rotineira foram tomadas amostras do eluído dos geradores produzidos no IPEN - SP.

### Medida da ativação total

Para as medidas das atividades iniciais, foi utilizado um calibrador de dose, modelo CRC - 10BC da Capintec, nas posições de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  e  $\text{Mo}_{\text{assay}}$ , este último com o uso de uma blindagem de chumbo.

### Espectroscopia - $\gamma$

As amostras foram analisadas no detetor de Germânio (HP), modelo GX1518 da Canberra, acoplado a um sistema de aquisição e tratamento de dados via microcomputador com o programa GENIE - PC, a fim de medir a pureza radionuclídica das amostras, tais como:

$\text{MoO}_3$  e gel de MoZr irradiados e os eluídos dos geradores de gel pré e pós - formado e do  $^{99}\text{Mo}$  de fissão.

## III. RESULTADOS E DISCUSSÃO

### Preparo do gerador tipo gel "pós-formado" e gel "pré-formado"

Comparando-se a eluição dos dois gels observa-se que o gerador preparado com o gel "pós-formado" (Gráfico 1) apresenta em 6 mL uma percentagem de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  em torno de 80%, em comparação com o gerador "pré-formado" (Gráfico 2) cuja percentagem apresentada é em torno de 33 - 43,4%, demonstrando que o gerador formado com  $\text{MoO}_3$  irradiado é a opção preferida.

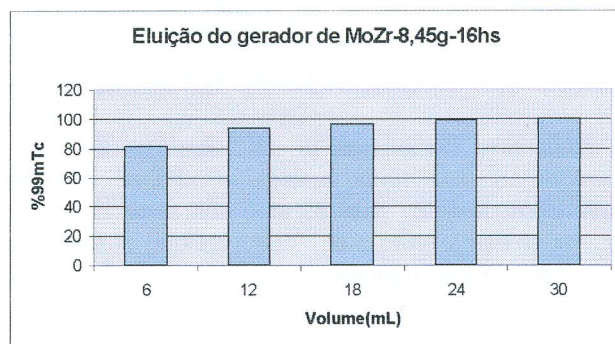


Figura 1. Curva de eluição de %  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  x volume para o gel "pós-formado"

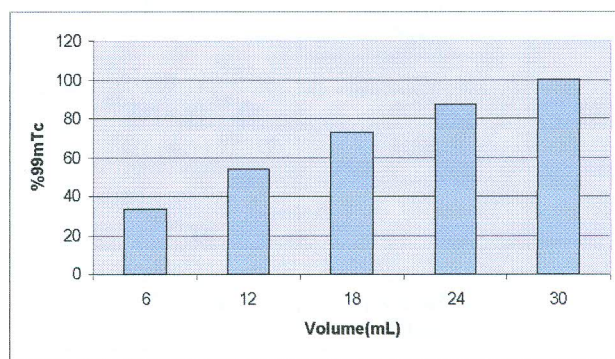


Figura 2. Curva de eluição de %  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  x volume para o gel "pré-formado"

### Irradiação dos Alvos de $\text{MoO}_3$ (diferentes fabricantes)

A Tabela 1 mostra os dados obtidos na espectroscopia- $\gamma$  de amostras dos alvos de  $\text{MoO}_3$  irradiados. As impurezas radionuclídicas detectadas nas amostras do  $\text{MoO}_3$  **ALDRICH** irradiado foram:  $^{124}\text{Sb}$ ,  $^{122}\text{Sb}$ ,  $^{92\text{m}}\text{Nb}$  e  $^{95}\text{Nb}$ , enquanto que o  $\text{MoO}_3$  **FLUKA** irradiado apresentou somente as impurezas de  $^{92\text{m}}\text{Nb}$  e  $^{95}\text{Nb}$  numa proporção menor.

TABELA 1. Comparação dos alvos de MoO<sub>3</sub> irradiados

MoO <sub>3</sub> - Aldrich				
E <sub>γ</sub> (keV)	Isótopo	T <sub>1/2</sub>	Reação	μCi/mCi <sup>99</sup> Mo
740	<sup>99</sup> Mo	66 h	<sup>98</sup> Mo(n,γ) <sup>99</sup> Mo	---
603	<sup>124</sup> Sb	60,2 d	<sup>123</sup> Sb(n,γ) <sup>124</sup> Sb	0,56
1691	<sup>122</sup> Sb	2,7 d	<sup>121</sup> Sb(n,γ) <sup>122</sup> Sb	2,36
934	<sup>92m</sup> Nb	10,16 d	<sup>92</sup> Mo(n,p) <sup>92m</sup> Nb	16,13
766	<sup>95</sup> Nb	34,97 d	<sup>94</sup> Zr(n,γ) <sup>95</sup> Zr β → <sup>95</sup> Nb	2,90
MoO <sub>3</sub> - Fluka				
E <sub>γ</sub> (keV)	Isótopo	T <sub>1/2</sub>	Reação	μCi/mCi <sup>99</sup> Mo
740	<sup>99</sup> Mo	66 h	<sup>98</sup> Mo(n,γ) <sup>99</sup> Mo	---
934	<sup>92m</sup> Nb	10,16 d	<sup>92</sup> Mo(n,p) <sup>92m</sup> Nb	16,26
767	<sup>95</sup> Nb	34,97 d	<sup>94</sup> Zr(n,γ) <sup>95</sup> Zr β → <sup>95</sup> Nb	0,31

Em relação aos alvos de MoO<sub>3</sub>, estimou-se a relação de atividade das impurezas em relação a atividade de <sup>99</sup>Mo. Esses resultados podem ser observados na Tabela 1, que mostra claramente, que o alvo MoO<sub>3</sub> FLUKA além de não apresentar impurezas de Sb, também apresenta uma relação menor entre as atividades, mostrando-se mais puro quimicamente para uso no preparo do gel.

#### Irradiação de Alvos do gel de MoZr

Os resultados da análise do gel irradiado estão mostrada na Tabela 2 (dois experimentos). As impurezas são as mesmas nos dois casos e em proporções muito próximas. A impureza de <sup>181</sup>Hf é proveniente da ativação do Hf, que é uma impureza presente no ZrOCl<sub>2</sub> comercial.

TABELA 2. Impurezas detectadas no gel pré-formado

MoZr (irradiação 8 h - Gel pré-formado 1)				
E <sub>γ</sub> (keV)	Isótopo	T <sub>1/2</sub>	Reação	μCi/mCi <sup>99</sup> Mo
740	<sup>99</sup> Mo	66 h	<sup>98</sup> Mo(n,γ) <sup>99</sup> Mo	---
757	<sup>95</sup> Zr	64 d	<sup>94</sup> Zr(n,γ) <sup>95</sup> Zr	0,27
482	<sup>181</sup> Hf	42,5 d	<sup>180</sup> Hf (n,γ) <sup>181</sup> Hf	1,58
141	<sup>99m</sup> Tc	6 h	<sup>99</sup> Mo $\xrightarrow{\beta}$ <sup>99m</sup> Tc	---
MoZr (irradiação 8 h - Gel pré-formado 2)				
E <sub>γ</sub> (keV)	Isótopo	T <sub>1/2</sub>	Reação	μCi/mCi <sup>99</sup> Mo
740	<sup>99</sup> Mo	66 h	<sup>98</sup> Mo(n,γ) <sup>99</sup> Mo	---
757	<sup>95</sup> Zr	64 d	<sup>94</sup> Zr(n,γ) <sup>95</sup> Zr	0,19
482	<sup>181</sup> Hf	42,5 d	<sup>180</sup> Hf (n,γ) <sup>181</sup> Hf	1,56
141	<sup>99m</sup> Tc	6 h	<sup>99</sup> Mo $\xrightarrow{\beta}$ <sup>99m</sup> Tc	---

#### Medida - γ dos eluídos dos geradores preparados com gel pré-formado e pós-formado

As Tabelas 3 e 4 mostram o resultado da análise da pureza radionuclídica do <sup>99m</sup>Tc eluído de geradores preparados com o gel pós-formado e pré-formado,

respectivamente. Comparando os resultados pode-se notar que o eluído do gel pós - formado tem como impurezas radionuclídicas o <sup>99</sup>Mo e o <sup>92m</sup>Nb, proveniente da ativação do <sup>92</sup>Mo pela reação (n, p) (TABELA 1).

O gel pré-formado apresentou uma série de impurezas radionuclídicas, como o <sup>175</sup>Hf, <sup>95</sup>Zr, <sup>92</sup>Nb e o

$^{181}\text{Hf}$ . Essas impurezas são provenientes da ativação do  $\text{MoO}_3$  e também do  $\text{ZrOCl}_2$ .

Assim pode-se observar que, apesar do nível de impurezas nos dois casos estar abaixo dos níveis permissíveis, o gel pós-formado apresenta um nível menor de impurezas radionuclídicas.

A pureza radionuclídica do eluído de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  produzido no gerador de  $^{99}\text{Mo}$  de fissão está mostrada na TABELA 5. As impurezas presentes são  $^{99}\text{Mo}$  e do  $^{103}\text{Ru}$  (produto de fissão) e estão abaixo do limite permissível de uma maneira comparável com o gel pós-formado, atendendo os requisitos de qualidade.

TABELA 3. Eluídos do gel pós-formado -  $\text{MoO}_3$  irradiado:

ELUÍDO - GEL PÓS-FORMADO				
$E_\gamma$ (keV)	Isótopo	$T_{1/2}$	Reação	$\mu\text{Ci/mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$
141	$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6 h	$^{99}\text{Mo} \xrightarrow{\beta} ^{99\text{m}}\text{Tc}$	---
740	$^{99}\text{Mo}$	66 h	$^{98}\text{Mo}(n,\gamma) ^{99}\text{Mo}$	$4,52 \times 10^{-4}$
935	$^{92\text{m}}\text{Nb}$	10,16 d	$^{92}\text{Mo}(n,p) ^{92\text{m}}\text{Nb}$	$7,37 \times 10^{-7}$

TABELA 4. Eluídos do gel pré-formado -  $\text{MoO}_3$  não irradiado:

ELUÍDO - GEL PRÉ-FORMADO				
$E_\gamma$ (keV)	Isótopo	$T_{1/2}$	Reação	$\mu\text{Ci/mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$
141	$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6 h	$^{99}\text{Mo} \xrightarrow{\beta} ^{99\text{m}}\text{Tc}$	---
740	$^{99}\text{Mo}$	66 h	$^{98}\text{Mo}(n,\gamma) ^{99}\text{Mo}$	$2,12 \times 10^{-3}$
344	$^{175}\text{Hf}$	70 d	$^{174}\text{Hf}(n,\gamma) ^{175}\text{Hf}$	$5,19 \times 10^{-5}$
757	$^{95}\text{Zr}$	64 d	$^{94}\text{Zr}(n,\gamma) ^{95}\text{Zr}$	$7,80 \times 10^{-5}$
767	$^{95}\text{Nb}$	34,97 d	$^{94}\text{Zr}(n,\gamma) ^{95}\text{Zr} \xrightarrow{\beta} ^{95}\text{Nb}$	$7,43 \times 10^{-5}$
482	$^{181}\text{Hf}$	42,5 d	$^{180}\text{Hf}(n,\gamma) ^{181}\text{Hf}$	$5,95 \times 10^{-4}$

TABELA 5. Impurezas radionuclídicas encontradas no gerador de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  produzido pelo  $^{99}\text{Mo}$  de fissão.

$E_\gamma$ (keV)	Isótopo	$T_{1/2}$	$\mu\text{Ci/mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$
141	$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6 h	---
740	$^{99}\text{Mo}$	66 h	$3,52 \times 10^{-4}$
497	$^{103}\text{Ru}$	40 d	$3,73 \times 10^{-5}$

Outra desvantagem do gel pré-formado é o pior perfil de eluição de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , devido ao aquecimento e possíveis danos radiolíticos na estrutura do gel durante a irradiação..

#### AGRADECIMENTOS

Este trabalho está sendo financiado pela FINEP, através de seu programa PRONEX.

#### IV. CONCLUSÕES

O presente estudo, que é parte do projeto de produção de  $^{99}\text{Mo}$  pela ativação de Mo e preparo dos geradores de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  com o gel de  $\text{MoZr}$ , mostrou que das duas técnicas de preparo do gel, a preferida é a do gel pós-formado. Isto porque além de produzir mais  $^{99}\text{Mo}$ , produz também menos impurezas radionuclídicas no processo de ativação e principalmente pelo menor número de contaminantes no produto final, o  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  gera uma quantidade maior de Mo.

#### REFERÊNCIAS

- [1] Boyd R. E (1986), IAEA - SR - 131/11.
- [2] Sepp Seifert, Gerhard Wagner, Armin Eckardt, "Highly Concentrated [ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ] Pertechnetate Solutions from (n, $\gamma$ )  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  Generators for Nuclear Medical use"; Appl. Radiat. Isot. Vol. 45, n° 5, pp. 577 - 579, 1994.
- [3] Robin D. Rogers, Andrew H. Bond, Jianhua Zhang, Cary B. Bauer; "Polyethylene Glycol Based-aqueous

**Biphasic Systems as Technetium - 99m Generators**", Appl. Radiat. Isot. Vol. 47, No 5/6, pp. 497 - 499, 1996.

[4] .Y. F. Shafiq, Z. M. Yousif, **"Characteristics and Behavior of a  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  Generator using irradiated Titanium Molydate as column matrix"**; J. Radioanal. Nucl. Chem., letters 199 (3) 173-181 (1995).

[5] E. Taskaev, M. Taskaeva, P. Nikolov; **"Extraction Generator for [ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ]Sodium Pertechnetate Production"**; Appl. Radiat. Isot. Vol. 46, n° 1, pp. 13-16, 1995.

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

[7] Craig C. Williams, M.S., James G. Kereiakes, Ph.D, and Laurence W. Grossman, Ph.D.. **"The Accuracy of  $^{99}\text{Mo}$  Molybdenum Assays in  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  technetium Solutions"**, Nuclear Medicine, Radiology 138: 445-448, February, 1981.

[8] Victor J. Molinski. **"A Review of  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  Generator Technology"**, Journal Appl.Radiat.Isto.,Vol.33, pp.811 to 819, 1982.

[9] R.E. Boyd, **"Technetium - 99m Generators - The Available Options"**, Int.J.Appl.Radiat.Isto., vol 33.,pp. 801 to 809, 1982.

### ABSTRACT

The most used radioisotope in Nuclear Medicine is  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , in the  $^{99}\text{Mo}-^{99\text{m}}\text{Tc}$  generator form.  $^{99}\text{Mo}$  can be produced by several nuclear reactions in Reactors and Cyclotrons. The cyclotron production is not technically and economically viable. The production in the Reactor can be done in two different ways: by the fission of  $^{235}\text{U}$  and by the  $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$  reaction. A project for the production of  $^{99}\text{Mo}$  by the activation of Mo and the preparation of gel type generators is under development at the "Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares". In the present work, the radionuclidic impurities produced in the activation of  $\text{MoO}_3$  and MoZr gel were evaluated, and these represent the two possible ways of preparing the gel of MoZr. The radionuclidic purity of  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  eluted from generators prepared in both ways was also measured and compared with the generators prepared with fission  $^{99}\text{Mo}$ .