

**CNEN/SP****ipen** Instituto de Pesquisas  
Energéticas e Nucleares

SEPARAÇÃO DE  $^{99}\text{Mo}$  DO  $^{132}\text{Te}$  USANDO TIOURÉIA COMO  
AGENTE COMPLEXANTE. APLICAÇÃO À SEPARAÇÃO DO  
 $^{99}\text{Mo}$  DOS PRODUTOS DE FISSÃO

Sônia Aparecida Cammarosano Mestnik e Constância Pagano Gonçalves da Silva

PUBLICAÇÃO IPEN 248

FEVEREIRO/1989

IPEN - PUB - 248,

SÃO PAULO

**SEPARAÇÃO DE  $^{99}\text{Mo}$  DO  $^{132}\text{Tc}$  USANDO TIOURÉIA COMO  
AGENTE COMPLEXANTE. APLICAÇÃO À SEPARAÇÃO DO  
 $^{99}\text{Mo}$  DOS PRODUTOS DE FISSÃO**

**Sônia Aparecida Cammarosano Mestnik e Constância Pagano Gonçalves da Silva**

**DEPARTAMENTO DE PROCESSAMENTO**

**CNEN/SP  
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES  
SÃO PAULO - BRASIL**

Série PUBLICAÇÃO IPEN

INIS Categories and Descriptors

B13.30

COMPLEXOMETRY  
MOLYBDENUM 99  
TELLURIUM 132

---

IPEN - Doc - 3257

Aprovado para publicação em 19/01/89.

Nota: A redação, ortografia, conceitos e revisão final são de responsabilidade do(s) autor(es).

SEPARAÇÃO DE  $^{99}\text{Mo}$  DO  $^{132}\text{Te}$  USANDO TIOURÉIA COMO AGENTE COMPLE-  
XANTE. APLICAÇÃO À SEPARAÇÃO DO  $^{99}\text{Mo}$  DOS PRODUTOS DE FISSÃO.\*

Sônia Aparecida Cammarosano Mestnik e Constância Pagano Gonçalves da  
Silva

RESUMO

Desenvolveu-se um método radioquímico para a se-  
paração de  $^{99}\text{Mo}$  do  $^{132}\text{Te}$  obtidos na fissão do  $^{235}\text{U}$  que se baseia na  
complexação do telúrio com tiouréia, em meio ácido. O telúrio forma  
complexo catiônico com a tiouréia, enquanto que tal não ocorre com o  
molibdênio nas mesmas condições experimentais. Os resultados obtidos  
mostraram que a retenção do complexo telúrio-tiouréia na resina catiô-  
nica Dowex-50W-X8, 100-200 mesh é  $(98,7 \pm 0,5)\%$ , sendo que  $(99,8 \pm$   
 $0,05)\%$  do  $^{99}\text{Mo}$  são encontrados no efluente. O  $^{99}\text{Mo}$  separado que foi  
analisado por espectrometria gama apresentou pureza radionuclídica sa-  
tisfatória para uso na preparação de geradores de  $^{99}\text{Mo}$ - $^{99m}\text{Tc}$ . Estu-  
dou-se também a retenção do  $^{99}\text{Mo}$  em colunas de alumina em função do  
pH observando-se que a retenção máxima ocorre no intervalo de pH en-  
tre 4,0 e 4,5. Preparou-se o gerador  $^{99}\text{Mo}$  -  $^{99m}\text{Tc}$  e eluiu-se o  $^{99m}\text{Tc}$   
com solução fisiológica. A pureza radionuclídica do eluído foi de  
100% aproximadamente, estando de acordo com as Farmacopéias Interna-  
cionais para uso em aplicações médicas.

---

(\*) Faz parte da Tese de Doutorado de Sônia Aparecida Cammarosano  
Mestnik, na área de Tecnologia Nuclear, 1988.

SEPARATION OF  $^{99}\text{Mo}$  FROM  $^{132}\text{Te}$  USING THIOUREA AS COMPLEXING AGENT.  
 APPLICATION TO THE SEPARATION OF  $^{99}\text{Mo}$  FROM THE FISSION PRODUCTS.

ABSTRACT

A radiochemical method to isolate  $^{99}\text{Mo}$  from  $^{132}\text{Te}$  both produced in the fission of  $^{235}\text{U}$  has been developed. The method is based on the formation of a cationic complex of tellurium with thiourea in acid medium which is retained ( $98.7 \pm 0.5$ )% on a cation exchange resin (Dowex 50W-X8, 100 - 200 mesh) while ( $99.8 \pm 0.05$ )%  $^{99}\text{Mo}$  passes through it, due to the non formation of such complex in the same experimental conditions. The radionuclidic purity of the separated  $^{99}\text{Mo}$  verified by using gamma spectrometry was found to be suitable for the preparation of  $^{99}\text{Mo} - ^{99m}\text{Tc}$  generators. The retention of  $^{99}\text{Mo}$  on an alumina column as function of pH was investigated. The best pH range for this purpose was found to be between 4.0 - 4.5. The  $^{99}\text{Mo} - ^{99m}\text{Tc}$  generator was prepared. The elution of  $^{99m}\text{Tc}$  was carried out with physiologic saline solution. The radionuclidic purity of the eluate was found suitable and the product can be used for Nuclear Medicine applications.

INTRODUÇÃO

I.1 COMPLEXAÇÃO TELÚRIO - TIOURÉIA

A tiouréia ou tiocarbamida apresenta propriedade de formar complexos tipo amín com numerosos metais pesados e reage também com muitos cations e anions, dando produtos coloridos de importância em Química Analítica. Os complexos formados com tiouréia são na sua quase totalidade de natureza catiônica<sup>(1)</sup>.

Abrão<sup>(1,2)</sup> verificou que  $\text{TeIV}$  reage com tiouréia levando à formação de complexo catiônico sendo fortemente absorvido em resina de troca catiônica. Mestnik<sup>(27)</sup> estudou as condições ideais de

formação do complexo, caracterizou o produto e verificou que nas mesmas condições experimentais não se formou complexo catiônico com o molibdênio.

Aplicou-se então o método desenvolvido à separação dos dois radioelementos  $^{132}\text{Te}$  e  $^{99}\text{Mo}$  formados na irradiação de urânio com nêutrons térmicos.

## I.2 - IMPORTÂNCIA DO PAR $^{99}\text{Mo}$ - $^{99m}\text{Tc}$ EM MEDICINA NUCLEAR

O  $^{99}\text{Mo}$  é de grande importância, porque seu decaimento radioativo (23) gera o  $^{99m}\text{Tc}$ , um dos radioisótopos mais utilizados em diagnósticos médicos. O desenvolvimento de técnicas que permitem uma visualização clara e segura de estruturas anatômicas está diretamente atribuído ao uso deste radionuclídeo.

As aplicações do  $^{99m}\text{Tc}$  abrangem dois grupos, dependendo da forma química em que é administrado. Quando na forma de pertecnetato ( $\text{TcO}_4^-$ ) ele é captado por quase todos os tecidos do corpo e assim ele é usado para estudos dinâmicos cardíacos (3), localização de tumor cerebral (43), cintilografia do cérebro, da tireóide e de glândulas salivares (3), e quando em seus estados de oxidação inferiores incorporado a compostos orgânicos ou inorgânicos é usado para muitos fins, conforme mostram os exemplos seguintes: Macroagregado de Soro Albumina Humana- $^{99m}\text{Tc}$  usado em cintilografia do pulmão (12) e estudos de fluxos sanguíneos (34); Fibrinogênio- $^{99m}\text{Tc}$  → estudos circulatórios (Trombose) (10,47), Ácido 2,3 - Dimercaptosuccínico (DMSA)- $^{99m}\text{Tc}$  e Glucoheptonato de Sódio- $^{99m}\text{Tc}$  → cintilografia renal (8); Pirofosfatos  $^{99m}\text{Tc}$ , Polifosfatos- $^{99m}\text{Tc}$ , Metilenodifosfonato (MDP- $^{99m}\text{Tc}$ ) → usados em cintilografia óssea (40).

O fato do  $^{99m}\text{Tc}$  ( $t_{1/2} = 6,02$  h) ser formado no decaimento do  $^{99}\text{Mo}$  ( $t_{1/2} = 66,0$  h) possibilita que este seja usado a grandes distâncias do local de produção, na forma de gerador  $^{99}\text{Mo}$ - $^{99m}\text{Tc}$  (9, 36, 45).

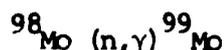
Um gerador de radioisótopos é um sistema composto por dois radionuclídeos, um dos quais possui meia-vida longa (chamado pai) que gera, por decaimento, um outro de meia-vida curta (chamado filho).

A separação química do  $^{99m}\text{Tc}$  de seu pai  $^{99}\text{Mo}$  é conseguida rapidamente por um simples procedimento de cromatografia em coluna, no qual o  $^{99m}\text{Tc}$  é eluído com solução salina normal.

### I.3 - PRODUÇÃO DE MOLIBDÊNIO-99

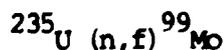
Os processos mais comuns de se produzir  $^{99}\text{Mo}$  são pela ativação de  $^{98}\text{Mo}$  com nêutrons térmicos ou também como resultado da fissão do  $^{235}\text{U}$ , ambos realizados em reator nuclear<sup>(18)</sup>.

No primeiro método, o  $^{99}\text{Mo}$  é produzido pela irradiação de  $^{98}\text{Mo}$  com nêutrons de acordo com a reação:



Trata-se de um processo simples, mas para se obter  $^{99}\text{Mo}$  com atividade específica alta deve-se usar alvo enriquecido e fluxo de nêutrons térmicos maior do que  $10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ , porque a seção de choque de ativação para o  $^{98}\text{Mo}$  é baixa (0,51 barns) e a porcentagem isotópica do  $^{98}\text{Mo}$  no molibdênio natural também é pequena, 24,6%<sup>(33)</sup>.

Para a produção de geradores de  $^{99m}\text{Tc}$  o segundo processo é preferencial porque se forma  $^{99}\text{Mo}$  com atividade específica alta, capaz de ser adsorvido em pequenas colunas de alumina que darão origem à soluções de  $^{99m}\text{Tc}$  com alta concentração radioativa. A fissão do urânio produz o  $^{99}\text{Mo}$  conforme a reação:



neste caso, entretanto, a seleção da forma química do alvo e a separação do  $^{99}\text{Mo}$  com qualidades aceitáveis para uso médico são complexas.

#### I.3.1 - MÉTODOS DE SEPARAÇÃO DO $^{99}\text{Mo}$ DOS PRODUTOS DE FISSÃO

##### I.3.1.1 - PROCESSOS NOS QUAIS SE USA A CROMATOLOGRAFIA EM COLUNA

Em 1962, Tucker e colaboradores<sup>(44)</sup> irradiaram li gas altamente enriquecidas de U-Al (93,15% de  $^{235}\text{U}$ ) e após a irradiação estas foram dissolvidas em solução 6M de  $\text{HNO}_3$ . O molibdênio e o telúrio foram separados usando coluna de alumina sendo o primeiro recu

perado pela eluição com solução 1M de  $\text{NH}_4\text{OH}$ . O método é descrito no Manual de Produção de Radioisótopos de Brookhaven <sup>(39)</sup>. Este foi o primeiro processo de separação do  $^{99}\text{Mo}$  dos produtos de fissão.

Richards <sup>(36)</sup> adicionou ao método uma fase de purificação final onde o  $^{99}\text{Mo}$  é reabsorvido em resina de troca aniônica forte, lavada para remover as impurezas radioativas em nível de traços e o produto final é eluído com solução 1,2N de HCl.

Na Austrália também foi desenvolvido um método semelhante ao proposto por Tucker, utilizando-se porém como alvo o dióxido de urânio natural <sup>(18)</sup>.

Arino e Kramer <sup>(6)</sup> estabeleceram um processo para a separação e purificação do  $^{99}\text{Mo}$  com alta atividade específica o qual utiliza como adsorvente grãos de carbono revestidos com prata (Ag-C). Este sistema adsorve seletivamente e quantitativamente o molibdênio de uma solução sulfúrica diluída de produtos de fissão. Acima de 80% do  $^{99}\text{Mo}$  adsorvido pode ser recuperado com solução diluída de NaOH, obtendo-se  $^{99}\text{Mo}$  com alta pureza radionuclídica (>99%).

O método desenvolvido por El-Garhy e colaboradores <sup>(15)</sup> consiste na dissolução do alvo (urânio natural) em  $\text{HNO}_3$  com gotas de HCl, evaporação das espécies voláteis e adsorção do par  $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$  em coluna de sílica gel. O efluente que contém o molibdênio e outros produtos de fissão é tratado com fosfato ácido de sódio e a seguir o  $^{99}\text{Mo}$  é fixado em coluna de alumina na forma de fosfomolibdato complexo. A seguir o  $^{99}\text{Mo}$  é eluído como íon molibdato com solução 10% de NaCl. Após várias reciclagens de adsorção e dessorção na alumina, o produto é totalmente livre de contaminantes.

Natsume e colaboradores <sup>(32)</sup> propõem um esquema para a separação sequencial dos produtos de fissão baseando-se na técnica de troca iônica. O alvo utilizado é o  $\text{U}_3\text{O}_8$  de composição isotópica natural dissolvido em  $\text{HNO}_3 + \text{HCl}$ , após irradiação. Usam um processo principal que envolve a troca catiônica e serve para separar um grupo de núclídeos e processos secundários onde se utilizam a troca catiônica ou aniônica objetivando separações ou purificações posteriores dos produtos de fissão individuais.

Este procedimento permite a separação e a determinação de elementos desde o zinco até o nióbio mas falha na recuperação do molibdênio e do telúrio (mesmo usando carregador). Kubota e Amano<sup>(20)</sup> contribuíram com este método estudando mais detalhadamente a separação quantitativa do  $^{99}\text{Mo}$  e  $^{132}\text{Te}$  dos produtos de fissão, também por troca iônica. Como no método anterior, o alvo usado foi o  $\text{U}_3\text{O}_8$ , o qual após a irradiação foi dissolvido em  $\text{HNO}_3$  seguido de tratamento com  $\text{HCl}$  concentrado. Este método também é efetivo para reduzir a contaminação com  $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$  e  $^{103}\text{Ru}$ . Os pesquisadores concluíram que o comportamento de troca iônica destes nuclídeos é influenciado pelos parâmetros: tamanho das partículas de  $\text{U}_3\text{O}_8$ , método de dissolução do alvo, intervalo de tempo entre a dissolução e a separação e quantidade de íon urânio.

El-Bayoumi e colaboradores<sup>(14)</sup> também separaram o  $^{99}\text{Mo}$  como Tucker<sup>(44)</sup>. O método consiste na dissolução do urânio metálico irradiado em  $\text{HCl}$ , volatilização do  $^{132}\text{TeH}_2$ , de isótopos de iodo e de gases provenientes da fissão e após faz-se a oxidação usando  $\text{HNO}_3$ . O molibdênio é separado usando-se coluna de alumina.

Um outro processo usado na separação do  $^{99}\text{Mo}$  dos produtos de fissão foi proposto por Levin e colaboradores<sup>(25)</sup> no qual também aplicam a técnica de extração por cromatografia em coluna. Usaram como adsorvente Teflon granular revestido com um filme de ácido di-(2-etil-hexil)-fosfórico (D2EHPA). O procedimento escolhido para a separação do  $^{99}\text{Mo}$  livre de carregador foi baseado nos estudos de extração do molibdênio com D2EHPA de soluções clorídricas<sup>(24)</sup> e em alguns experimentos em coluna realizados pelos pesquisadores.

### I.3.1.2 - MÉTODOS DE SEPARAÇÃO DO $^{99}\text{Mo}$ DOS PRODUTOS DE FISSÃO UTILIZANDO-SE A EXTRAÇÃO POR SOLVENTES.

Lewis<sup>(26)</sup> desenvolveu um processo de recuperação e purificação do  $^{99}\text{Mo}$  baseado na extração com ácido-(2-etil-hexil)fosfórico. Irradiou ligas enriquecidas de U-Al dissolvendo-as em solução alcalina ( $\text{NaOH}$  6N). O urânio e os produtos de fissão insolúveis na forma de hidróxidos são separados por filtração e o  $^{99}\text{Mo}$  é separado por extração com ácido di-(2-etil-hexil)-fosfórico em querosene. O  $^{99}\text{Mo}$  é revertido da fase orgânica com peróxido de hidrogênio acidificado e

convertido em molibdato de amônio em solução de  $\text{NH}_4\text{OH}$ .

Kawakami<sup>(19)</sup> introduziu uma variação neste processo, onde após duas extrações e reversões, carregou uma coluna de alumina com solução ácida de  $^{99}\text{Mo}$  e após a lavagem, o  $^{99}\text{Mo}$  foi eluído com amônia. Obteve-se o  $^{99}\text{Mo}$  radionuclidicamente puro.

O  $^{99}\text{Mo}$  também pode ser extraído de uma solução níttrica de urânio fissionado, por acetil acetona em tetracloreto de carbono<sup>(17)</sup> e a reversão realizada com amônia.

Uma outra variação do método de extração é descrita por Sivaramkrishnan e colaboradores<sup>(38)</sup>, onde o  $^{99}\text{Mo}$  é separado do urânio e produtos de fissão pela precipitação com  $\alpha$ -benzoil oxima após a adição de carregador de molibdênio. O oxinato  $\alpha$ -benzólico de  $^{99}\text{Mo}$  é então dissolvido em acetato de etila e revertido com solução 6M de hidróxido de amônio. Após o processo de purificação, envolvendo repetidos ciclos de extração por solvente e precipitação, o  $^{99}\text{Mo}$  é reprecipitado com  $\alpha$ -benzoil oxima. A grande desvantagem associada ao método é a atividade específica baixa resultante da adição de carregador.

Ejaz<sup>(13)</sup> estudou a extração do molibdênio-VI e urânio-VI de soluções clorídricas por soluções de 4-(5-nonil) piridina em xileno. A possibilidade de separação do molibdênio-VI do urânio-VI e alguns produtos de fissão também foi examinada.

Lee, Cheng e Ting<sup>(22)</sup> realizaram um estudo sobre a extração por solvente aplicado à separação do  $^{99}\text{Mo}$  de urânio em solução de ácido sulfúrico, com tri-n-octilamina (TOA) em querosene. Basearam-se nas diferentes constantes de estabilidade dos complexos formados entre  $\text{UO}_2$  (VI) e  $\text{MoO}_2$  (VI) com TOA. O urânio é revertido da fase orgânica por concentrações apropriadas de cloreto enquanto que o  $^{99}\text{Mo}$  é retirado da fase orgânica com solução de hidróxido de amônio ou carbonato de sódio.

### I.3.1.3 - MÉTODOS DE SEPARAÇÃO UTILIZANDO-SE A SUBLIMAÇÃO

A literatura cita também métodos de separação do  $^{99}\text{Mo}$  do  $\text{UO}_2$  irradiado, nos quais se usam a sublimação. Em 1976, Motojima e colaboradores<sup>(31)</sup> estudaram um método no qual o  $\text{UO}_2$  foi irradiado

e convertido a  $U_3O_8$  por aquecimento ao redor de  $500^\circ C$  em atmosfera de oxigênio. Em seguida os núclídeos  $^{99}Mo$ ,  $^{132}Te$  e  $^{103}Ru$  foram separados do  $U_3O_8$  aquecendo-se num intervalo de temperatura de  $800-1200^\circ C$ , sob vácuo. Os autores não conseguiram separação completa destes núclídeos. Entretanto, Tanase e colaboradores<sup>(41)</sup> continuaram o estudo e em 1979 estabeleceram um novo método de sublimação semelhante ao anterior sendo que neste a sublimação completa do  $^{99}Mo$ ,  $^{103}Ru$  e  $^{132}Te$  ocorre em temperaturas acima de  $1200^\circ C$  também sob vácuo. O  $^{99}Mo$  foi sublimado entre  $1280-1300^\circ C$  e foi recuperado com rendimento acima de 80%.

#### I.3.1.4-PROCESSOS DE SEPARAÇÃO ENVOLVENDO A TÉCNICA DA PRECIPITAÇÃO

Alguns processos de separação também fazem uso da precipitação. Assim, Blagojevic e colaboradores<sup>(7)</sup> desenvolveram um método para a extração preliminar do  $^{99}Mo$  dos produtos de fissão, a partir do  $UO_2$  irradiado, baseado na reação de precipitação entre molibdênio-VI e 3-4-ditiol-tolueno. O complexo insolúvel de molibdênio é separado de outros produtos de fissão por filtração e então recuperado pela dissolução com acetona.

Tanase e colaboradores<sup>(42)</sup> separaram o  $^{99}Mo$  de outros produtos de fissão partindo-se do  $UO_2$  irradiado dissolvido em  $HNO_3$  e coprecipitando o  $^{99}Mo$  com enxofre, proveniente de uma solução de sulfeto de potássio. O  $^{99}Mo$  é coprecipitado juntamente com outros produtos de fissão e sua recuperação é feita com  $NaOH$  para uma posterior purificação. Esta técnica é válida para a separação preliminar do  $^{99}Mo$  porque reduz as quantidades de  $^{140}Ba$ ,  $^{140}La$  e  $^{131}I$  simplificando fases subsequentes.

### PARTE EXPERIMENTAL

#### II.1-MATERIAIS E EQUIPAMENTOS

##### II.1.1-MATERIAIS

Radioisótopos utilizados.

Para a preparação do complexo de telúrio utili-

zou-se ácido telúrico irradiado, fazendo-se uso de  $^{123m}\text{Te}$  ( $t_{1/2} = 104$  d) como traçador ou o  $^{132}\text{Te}$  ( $t_{1/2} = 78$  h) proveniente da fissão do  $^{235}\text{U}$ .

Nos estudos com molibdênio usou-se o  $^{99}\text{Mo}$  de fissão ( $t_{1/2} = 66$  h) proveniente da "Atomic Energy of Canadá.

#### Colunas Cromatográficas.

O trocador catiônico usado no estudo da retenção dos complexos foi a resina catiônica forte Dowex-50W-X8, granulometria 100-200 mesh.

A retenção do produto final ( $^{99}\text{Mo}$ ) foi verificada em alumina cromatográfica Merck, ácida, grau I.

#### II.1.2 - EQUIPAMENTOS.

##### II.1.2.1 - MEDIDAS DE RADIOATIVIDADE.

Usou-se um espectrômetro de raios  $\gamma$  provido de detector de Ge-Li, Ortec, acoplado a um analisador de 4096 canais, Ortec, modelo 7450.

##### II.1.2.2 - MEDIDAS DE pH.

Utilizou-se um medidor de pH Metrohn Herisau, modelo E 350B.

#### II.1.3 - REAGENTES.

Todos os reagentes usados foram de grau analítico, procedentes da Merck.

II.2 - PREPARAÇÃO DO COMPLEXO TELÚRIO-TIOURÉIA UTILIZANDO-SE  $^{123m}\text{Te}$  E  $^{132}\text{Te}$  E ESTUDO DE SUAS RETENÇÕES EM RESINA CATIONICA (DOWEX 50w-X8, 100 - 200 mesh).

II.2.1 - PROCEDIMENTO PARA A PREPARAÇÃO DO COMPLEXO

A uma alíquota de 10 ml de solução  $10^{-3}\text{M}$  de ácido telúrico ( $^{123m}\text{Te}$ ) adicionou-se 0,5ml de ácido sulfúrico concentrado e 1 ml de solução ( $3,6 \times 10^{-1}\text{M}$ ) de cloridrato de hidroxilamina. Aqueceu-se a solução a  $80 - 90^{\circ}\text{C}$  durante cinco minutos. Adicionou-se 0,5g de tiouréia e continuou-se o aquecimento por mais cinco minutos. O pH da solução final manteve-se ao redor de 1,0.

Após 30 minutos percolou-se uma alíquota da solução pela resina e lavou-se com 25 ml de água acidulada em pH igual ao da solução carga.

As atividades das soluções carga, efluente e lavagem foram verificadas para a determinação das retenções, que se encontram na TABELA I.

O mesmo procedimento foi adotado para a preparação do complexo com  $^{132}\text{Te}$ . Utilizaram-se alíquotas de 10 ml de solução de  $^{132}\text{Te}$  (livre de carregador).

Foram considerados os fótópicos de 158,8 KeV e 228,2 KeV, relativos aos  $^{123m}\text{Te}$  e  $^{132}\text{Te}$ , respectivamente.

II.2.2 - CONDICIONAMENTO DAS COLUNAS

Colocaram-se 4 a 5 ml de resina cationica (Dowex 50w-X8, 100-200 mesh) em colunas de vidro de 9 mm de diâmetro. Estas foram lavadas com 25 ml de HCl 1N, e com água destilada até eliminação do excesso de ácido.

II.3 - ESTUDO DO COMPORTAMENTO DO MOLIBDÊNIO COM TIOURÉIA EM TROCADOR CATIONICO.

Estudou-se também o comportamento do  $^{99}\text{Mo}$  na presença de tiouréia em condições idênticas às de preparação do complexo telúrio-tiouréia especificadas no ítem II.2.1.

A solução foi percolada pela resina cationica e as atividades da solução carga, efluente e lavagem foram verificadas no fótópico de 739,7 KeV correspondente ao  $^{99}\text{Mo}$ . A seguir determinaram-se as retenções e os resultados obtidos são apresentados na TABELA II.

## II.4 - APLICAÇÃO DO MÉTODO DESENVOLVIDO À SEPARAÇÃO DO PAR $^{99}\text{Mo}$ - $^{132}\text{Te}$ OBTIDOS NA FISSÃO DO $^{235}\text{U}$ .

### II.4.1 - IRRADIAÇÕES

Amostras de  $\text{U}_3\text{O}_8$  de 10 mg foram irradiadas em ampolas de quartzo sob um fluxo de nêutrons térmicos da ordem de  $10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.s, durante 8 horas e aguardado o período de resfriamento de dois dias para o início dos experimentos.

### II.4.2 - PROCESSO DE SEPARAÇÃO DO PAR $^{132}\text{Te}$ - $^{99}\text{Mo}$ DOS PRODUTOS DE FISSÃO

As amostras foram dissolvidas em 2 ml de ácido nítrico (1:1) e a solução resultante foi diluída para se ter uma solução 1N em ácido nítrico. A solução foi percolada por coluna de alumina (diâmetro = 9 mm, altura = 2 cm), condicionada com solução 1N de ácido nítrico. Assim são retidos o molibdênio, o telúrio e traços de iodo.

A coluna foi lavada com 50 ml de solução 0,1N de ácido nítrico para remoção de todo o urânio residual e produtos de fissão. Em seguida lavou-se com 50 ml de água destilada e depois com 30 ml de hidróxido de amônio 0,01M para a remoção do iodo.

O molibdênio e o telúrio foram eluídos com 30ml de solução 1N de hidróxido de sódio.

### II.4.3 - SEPARAÇÃO DO PAR $^{99}\text{Mo}$ - $^{132}\text{Te}$ USANDO-SE A TIOURÉIA COMO AGENTE COMPLEXANTE

A solução contendo  $^{99}\text{Mo}$  e  $^{132}\text{Te}$  foi evaporada e o resíduo foi dissolvido em 10 ml de água destilada. Em seguida adicionou-se ácido sulfúrico, cloridrato de hidroxilamina e tiouréia conforme mencionado em L.21 e após 30 minutos percolou-se a solução por resina catiônica. Lavou-se a coluna com 25 ml de água acidificada com  $\text{H}_2\text{SO}_4$  em pH igual ao da solução carga (aproximadamente 1,0).

As atividades do  $^{99}\text{Mo}$  e do  $^{132}\text{Te}$  das soluções carga, efluente mais solução de lavagem foram verificadas e o resultado médio das retenções em seis experimentos foi  $(98,7 \pm 0,5\%)$  para o

$^{132}\text{Tc}$  e  $(0,16 \pm 0,05\%)$  para o  $^{99}\text{Mo}$ .

A TABELA III mostra estes resultados.

## II.5 - ANÁLISE DA PUREZA RADIONUCLÍDICA DAS SOLUÇÕES DE $^{99}\text{Mo}$ OBTIDAS PELO MÉTODO ESTABELECIDO.

Considerando-se que o  $^{99}\text{Mo}$  assim obtido tem como finalidade a produção de geradores de  $^{99m}\text{Tc}$ , é importante que este apresente alta pureza radionuclídica uma vez que a natureza da contaminação do  $^{99m}\text{Tc}$  eluído dos geradores é determinada pelo processo de produção do pai,  $^{99}\text{Mo}$ .

Muitas impurezas, em nível de traços, presentes no material alvo, são ativadas com nêutrons e eventualmente aparecem como contaminantes radionuclídicos no  $^{99m}\text{Tc}$  separado.

Em geradores produzidos pela reação  $^{235}\text{U}(n,f)$ ,  $^{99}\text{Mo}$  outros produtos de fissão podem estar presentes. Os contaminantes mais comuns são:  $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{132}\text{Te}$  ( $\gamma$  emissores) e  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  ( $\beta$  emissores).

Analisou-se o produto obtido por espectrometria  $\gamma$  e os teores de contaminantes encontrados foram:

$$^{131}\text{I} = 1,7 \cdot 10^{-3} \text{ KBq/MBq Mo}$$

$$^{103}\text{Ru} = \text{não foi detectado}$$

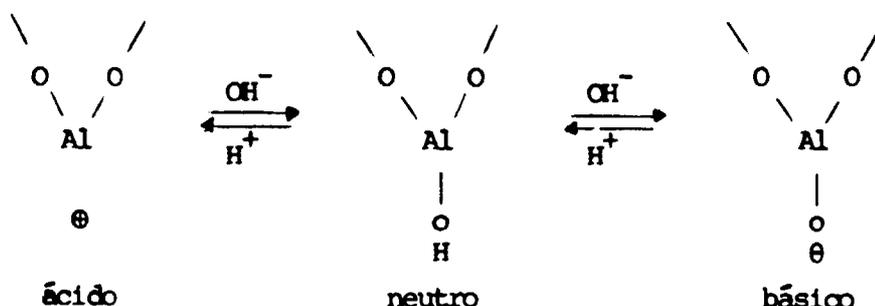
$$^{132}\text{Te} = 3,0 \cdot 10^{-2} \text{ KBq/MBq Mo}$$

## II.6 - INFLUÊNCIA DO pH NA RETENÇÃO DO $^{99}\text{Mo}$ EM COLUNAS DE ALUMINA

Estudou-se o pH adequado para retenção do  $^{99}\text{Mo}$  obtido pelo presente método, em colunas de alumina, suporte este comumente usado em geradores de  $^{99m}\text{Tc}$ .

A adsorção do íon molibdato na alumina depende do pH, o qual acarreta mudanças em sua estrutura química bem como na carga elétrica superficial da alumina (5).

A alumina é carregada positivamente<sup>(4)</sup> em meio ácido podendo adsorver o íon molibdato que é carregado negativamente. Entretanto, na região de pH neutro a básico, a carga elétrica de sua superfície é neutra ou negativa, portanto não adsorvendo os íons  $\text{MoO}_4^{--}$ . Assim<sup>(5)</sup>,



Em meio ácido, o número de átomos de Mo em um íon molibdato aumenta com o aumento da acidez devido à polimerização<sup>(11)</sup> de íons molibdato monoméricos. Além do pH, este processo depende da concentração da solução de molibdênio e pode ser representado por<sup>(37)</sup>:



A polimerização inicia em  $\text{pH} < 7$  e em concentrações de molibdênio acima de  $0,001\text{M}$ <sup>(30,35)</sup>.

Na produção de gerador de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  trata-se normalmente a coluna de alumina com solução ácida antes e depois da retenção do  $^{99}\text{Mo}$  e normalmente carrega-se a coluna com  $^{99}\text{Mo}$  em meio ácido (HCl). Após a adsorção lava-se a coluna com solução salina fisiológica até que o pH do eluído seja ao redor de 5, uma vez que a solução de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  deva ser aproximadamente neutra para injeção intra-venosa<sup>(46)</sup>.

A adsorção de molibdênio em alumina e a determi-

nação de sua capacidade de adsorção em baixas concentrações são portanto de interesse particular na produção de geradores de  $^{99m}\text{Tc}$  (5,28).

Neste trabalho estudou-se o efeito do pH na retenção do  $^{99}\text{Mo}$  em alumina no intervalo de 2,5 a 5,5. Utilizou-se  $^{99}\text{Mo}$  livre de carregador, de atividade baixa ( $< \mu\text{Ci}$  ou  $< 37 \text{ KBq}$ ).

#### II.6.1 - PREPARAÇÃO E CONDICIONAMENTO DAS COLUNAS DE ALUMINA

Utilizaram-se cinco colunas de vidro de 0,9 cm de diâmetro contendo aproximadamente dois gramas de alumina (seca), a qual foi lavada com água destilada, decantando-se e desprezando-se o sobrenadante contendo as partículas finas (para  $\approx 10$  gramas de alumina usaram-se cinco volumes de 50 ml de água destilada). Em seguida lavou-se quatro vezes com 25 ml de solução 0,1 N de ácido clorídrico também decantando-se e desprezando-se as partículas em suspensão.

Condicionaram-se estas colunas em diferentes pH, usando solução de HCl, de maneira que estes atingissem os valores: 2,5 3,5 4,0 4,5 e 5,5.

#### II.6.2 - PERCOLAÇÃO

Amostras de 5 ml da solução de  $^{99}\text{Mo}$  foram submetidas ao ajuste de pH utilizando-se ácido clorídrico. Assim as soluções carga apresentaram os pH seguintes: 2,5 3,5 4,0 4,5 e 5,5.

A seguir estas foram percoladas pelas colunas de alumina com uma vazão de aproximadamente 1,0 ml/min. Após a passagem das soluções de molibdênio, as colunas foram lavadas com 20 ml de água destilada, acidulada com HCl, em pH semelhante ao da solução carga.

A adsorção máxima ocorreu no intervalo de pH de 4,0 a 4,5 conforme é apresentado na TABELA IV.

#### II.7 - ELUIÇÃO DO $^{99m}\text{Tc}$

Cinco mililitros da solução de  $^{99m}\text{Mo}$ , obtido pelo método estabelecido no presente trabalho, foram ajustados em pH =4,5

e a seguir percolados por coluna de vidro de 9 mm de diâmetro contendo dois gramas de alumina condicionada em pH semelhante ao da solução carga, com ácido clorídrico.

Lavou-se então a coluna com 20ml de água, acidificada em pH = 4,5 com HCl. Após, lavou-se novamente com 90 ml de cloreto de sódio fisiológico até pH = 5.

Fez-se a eluição do  $^{99m}\text{Tc}$  com 3 ml de NaCl fisiológico e analisou-se o eluído por espectrometria  $\gamma$ .

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

### III.1 - RETENÇÃO DO COMPLEXO TELÚRIO-TIOURÉIA EM RESINA CATIONICA (DOWEX-50W-X8, 100-200 mesh) E VERIFICAÇÃO DO COMPORTAMENTO DO MOLIBDÊNIO + TIOURÉIA NA MESMA RESINA .

Os resultados da TABELA I sobre a retenção dos complexos  $^{123m}\text{Te}$  e  $^{132}\text{Te}$ -tiouréia em resina cationica forte confirmam uma complexação completa após 30 minutos, visto que as retenções médias obtidas foram respectivamente  $(98,6 \pm 0,8)\%$  e  $(98,0 \pm 1,6)\%$ , enquanto que  $(98,3 \pm 1,7)\%$  do  $^{99}\text{Mo}$  percolado pela resina aparecem na solução efluente mais lavagem (TABELA II).

Este fato nos mostra que o  $^{99}\text{Mo}$  não forma complexo cationico com a tiouréia, nas condições estudadas para o telúrio (item II.2), sendo portanto recolhido no efluente.

TABELA I - Retenção do Complexo Telúrio-Tiourêia em Resina Catiônica Forte, Dowex 50w-X8, Granulometria 100 - 200 mesh.

Experimento	% de Retenção	
	$^{123m}\text{Te}$	$^{132}\text{Te}$
1	99,0	99,5
2	99,6	96,1
3	98,2	97,0
4	97,2	99,1
5	98,8	99,6
6	99,1	96,7
Retenção Média	$(98,6 \pm 0,8)\%$	$(98,0 \pm 1,6)\%$

TABELA II - Porcentagem de  $^{99}\text{Mo}$  no Efluente mais Solução de Lavagem de Colunas de Resina Catiônica Forte, Dowex-50w-X8, 100-200 mesh

Experimento	Porcentagem de $^{99}\text{Mo}$ no Efluente + Lavagem
1	98,6
2	98,1
3	95,0
4	99,9
5	99,1
6	99,3
Retenção Média	$(98,3 \pm 1,7)\%$

III.2 SEPARAÇÃO DO PAR  $^{99}\text{Mo}$ - $^{132}\text{Te}$  OBTIDOS NA FISSÃO DO  $^{235}\text{U}$  APLICANDO-SE O MÉTODO ESTABELECIDO NO PRESENTE TRABALHO E ANÁLISE RADIONUCLÍDICA DO PRODUTO.

A TABELA III mostra que a separação do par  $^{99}\text{Mo}$ - $^{132}\text{Te}$  foi atingida com êxito, uma vez que a retenção média de seis experimentos para o  $^{132}\text{Te}$  foi  $(98,7 \pm 0,5)\%$  ficando apenas  $(0,16 \pm 0,05)\%$  do  $^{99}\text{Mo}$  retido na coluna.

Ainda, analisando-se a solução de  $^{99}\text{Mo}$  assim obtida, quanto aos teores dos contaminantes emissores  $\gamma$   $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  e  $^{132}\text{Te}$ , conforme citado em II.5, conclui-se que estes resultados são satisfatórios pois se encontram abaixo dos limites estabelecidos para o  $^{99}\text{Mo}$  de fissão usado em geradores de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  (29), os quais são os seguintes:

$$^{131}\text{I} < 5 \times 10^{-2} \text{ KBq/MBq } ^{99}\text{Mo}$$

$$^{103}\text{Ru} < 5 \times 10^{-2} \text{ KBq/MBq } ^{99}\text{Mo}$$

$$^{132}\text{Te} < 5 \times 10^{-2} \text{ KBq/MBq } ^{99}\text{Mo}$$

TABELA III - Porcentagem de Retenção do Complexo  $^{132}\text{Te}$ -Tiouréia e do  $^{99}\text{Mo}$  em Resina Catiônica Forte Dowex-50W-X8, Granulometria 100-200 mesh.

Experimento	Porcentagem de Retenção	
	Complexo $^{132}\text{Te}$ -Tiouréia	$^{99}\text{Mo}$
1	98,8	0,13
2	97,8	0,25
3	98,7	0,11
4	99,2	0,15
5	99,1	0,18
6	98,8	0,14
Retenção Média	$(98,7 \pm 0,5)\%$	$(0,16 \pm 0,05)\%$

### III.3 - INFLUÊNCIA DO pH NA RETENÇÃO DO $^{99}\text{Mo}$ EM COLUNAS DE ALUMINA

Analisando-se a TABELA IV observa-se que a retenção máxima do  $^{99}\text{Mo}$  ocorre em pH ao redor de 4,0 - 4,5. Observa-se também a tendência da retenção diminuir mais rapidamente em pH mais altos enquanto que em pH mais baixos ela diminui lentamente.

TABELA IV - Efeito do pH na Adsorção do  $^{99}\text{Mo}$  em Colunas de Alumina Cromatográfica, Merck, Grau I.

Experimento	pH da Coluna	% de $^{99}\text{Mo}$ Adsorvido
1	2,5	88,9
2	3,5	95,3
3	4,0	99,2
4	4,5	99,4
5	5,5	80,2

Em concentrações baixas, menores que 0,001M, e em soluções ácidas (5,30,35), o molibdênio é presente na superfície da alumina como  $\text{MoO}_4^{2-}$ , mas quando a concentração é aumentada aparecem isopolimolibdatos, conforme citado no item II.6. Em nossos experimentos, usaram-se soluções diluídas, ou seja,  $C_{\text{Mo}} < 1 \times 10^{-3}\text{M}$ , portanto podendo-se considerar que o Mo(VI) apresenta-se no estado monomérico ( $\text{MoO}_4^{2-}$ ) independente do pH da solução. Assim, sua retenção na alumina, nos diferentes pH por nós estudados, dá-se na forma de  $\text{MoO}_4^{2-}$ .

Ainda analisando-se a TABELA IV, a tendência da absorção diminuir mais bruscamente em região mais próxima de pH neutro a básico (pH  $\neq$  5,5) pode ser explicada pelo fato da superfície da alumina ser neutra ou negativa nesta região, deixando portanto de adsorver ions molibdatos (5).

Nossos resultados são concordantes com aqueles obtidos por Gonzales, Manzini e Marques (16) e por Lavi (21).

### III.4- ELUIÇÃO DO $^{99m}\text{Tc}$

Considerando-se que a natureza da contaminação do  $^{99m}\text{Tc}$  eluído seja determinada pelo processo de obtenção do pai e que o  $^{99}\text{Mo}$  separado sob as condições estabelecidas neste trabalho apresentou teores de contaminantes emissores  $\gamma$  abaixo dos limites estabelecidos para o  $^{99}\text{Mo}$  de fissão, usado na produção de geradores, (item II.5), conclui-se que o  $^{99m}\text{Tc}$  eluído também esteja com pureza radionuclídica satisfatória, podendo ser útil para fins médicos.

A FIGURA 1 mostra o espectro de raios gama do  $^{99m}\text{Tc}$  eluído, no qual observa-se apenas a presença de  $^{99m}\text{Tc}$ , após contagens durante 7 200 segundos.

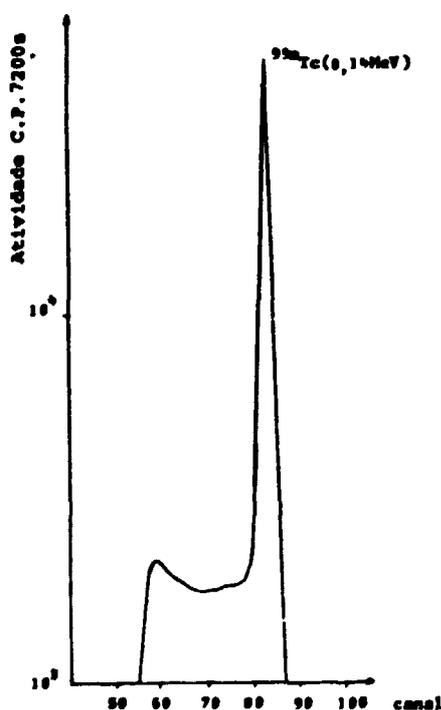


Figura 1. Espectro de Raios Gama de uma solução de  $^{99m}\text{Tc}$ , imediatamente após a eluição com solução de NaCl 0,9%. Detector Ge-Li, Analisador de 4096 canais.

## III.5- CONCLUSÕES

Conclui-se do presente trabalho que o método estabelecido pode ser utilizado na separação do par  $^{99}\text{Mo}$ - $^{132}\text{Tc}$  obtidos na fissão do  $^{235}\text{U}$  e assim aplicá-lo à separação do  $^{99}\text{Mo}$  dos produtos de fissão.

O  $^{99}\text{Mo}$  apresentou pureza radionuclídea adequada quando se irradiou óxido de urânio durante oito horas apenas, porém se a irradiação for realizada por períodos mais prolongados, faz-se necessário um controle mais rigoroso. Isto também é válido para as soluções de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  eluído.

Ainda o  $^{99}\text{Mo}$  obtido pelo método estudado é retido em colunas de alumina em pH ao redor de 4,0 a 4,5, sendo adequado à preparação de geradores de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ .

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ABRÃO, A. Estudo do comportamento de extração de vários elementos por aminas de cadeias longas na presença de tiouréia como agente complexante. São Paulo, 1971. (Tese de doutoramento, Instituto de Química, Universidade de São Paulo).
2. ABRÃO, A. A rapid radiochemical ion-exchange separation of iodide from tellurium. A novel radiiodine-132 generator. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, 1975. (IEA-Pub-371).
3. ALASBIMN. Manual de control de calidad de radiofarmacos. Montevideo, 1986.
4. AMPHLETT, C.B. Inorganic ion exchanger. Amsterdam, Elsevier, 1964. p.85.
5. ARINO, H. & KRAMER, H.H. Fission product  $^{99}\text{Tc}$  generator. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 26:301-3, 1975.
6. ARINO, H. & KRAMER, H.H. Separation and purification of radiomolybdenum from a fission product mixture using silver-coated carbon granules. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 29(2):97-102, 1978.
7. BLAGOJEVIC, N.; BOYD, R.E.; HETHERINGTON, E.L. The extraction of fission product molybdenum-99 by dithiols precipitation. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 36(1): 85-6, 1985.
8. BLAUFox, D.M.; CHERVRE, L.R.; FREEMAN, L.M. Radiopharmaceuticals for quantitative study of renal function. In: SUBRAMANIAN, G.; RHODES, B.A.; COOPER, J.F.; SODD V.C. Radiopharmaceuticals. New York, Society of Nuclear Medicine, 1975. p.385.
9. BOYD, R.E. Molybdenum-99: Technetium-99m generator. Radiochim. Acta., 30:123-45, 1982.

10. CHARKES, N.D.; MALMUD, L.S.; STERN, H. Comparative evaluation of current scanning agents for thrombus detection. In: SUBRAMANIAN, G.; RHODES, B.A.; COOPER, J.F.; SODD, V.J., eds. Radiopharmaceuticals. New York, Society of Nuclear Medicine, 1975. p.525.
11. COOPER, M.K. & SALMON, J.E. J. Chem. Soc., p.2009, 1962 apud ARINO H. & KRAMER, H.H. Fission product  $^{99m}\text{Tc}$  generator. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 26:301-3, 1975.
12. DAVIS, M.A. Particulate radiopharmaceuticals for pulmonary studies. In: SUBRAMANIAN, G.; RHODES, B.A.; COOPER, J.F.; SODD, V.C. Radio - pharmaceuticals. New York, Society of Nuclear Medicine, 1975.p.267.
13. EJAZ, M. Separation of molybdenum (VI) from uranium(VI) and fission products. Radiochim. Acta., 22:51-2, 1975.
14. EL-BAYOUMI, S.; HLADIK, O.; MÜNZE, R. Absorption behaviour of  $^{99}\text{Mo}$  and U on alumina in nitric acid. Isotopenpraxis, 9(4):131-2, 1973.
15. EL-GARHY, M.; SHEKATA, M.; EL-BAYOUMI, S. Selective separation of  $^{99}\text{Mo}$  from fission products in chloride media on activated alumina. J. Radioanal. Chem., 10:35-40, 1972.
16. GONZALES, A.J.; MANZINI, A.C.; MARQUES, R.O. Progress on production of  $^{99}\text{Mo}$ - $^{99m}\text{Tc}$  generators in Argentina. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Radionuclide generator technology: proceedings of the scientific meeting, held in Vienna, 13-17 Oct., 1986. (Separata).
17. HEYNE, W. Spaltmolybdänabtrennung durch extraktion mit acetylaceton Isotopenpraxis, 10(13):343, 1977.
18. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Radioisotope production and quality control. Vienna, 1971. p.698, 709. (Technical report series, 128).

19. KAWAKAMI, Y. Large scale production of  $^{99}\text{Mo}$ . Isotope News, p.6-7, Oct. 1977.
20. KUBOTA, M. & AMANO, H. Sequential cation - exchange separation of  $^{99}\text{Mo}$  and  $^{132}\text{Te}$  from neutron irradiated  $\text{U}_3\text{O}_8$ . J. Nucl. Sci. Technol. 14(5):376-80, 1977.
21. LAVI, N. The study of conditions for the preparation and application of  $^{99}\text{Mo}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$  generators starting from irradiated molybdenum metal. J. Radional. Chem., 42: 25-34, 1978.
22. LEE, T.W.; CHENG, W.L.; TING, G. Solvent extraction study on the separation of molybdenum-99 and uranium in sulfuric acid solution by tri-n-octylamine in kerosene. Solvent Extr. Ion Exch., 2(3):435-50, 1984.
23. LEGRAND, J.; PEROLAT, J.P.; LAGOUTINE, F.; LE GALLIC, Y. Table de radionucléides. Saclay, Commissariat a l'Energie Atomique, 1975.
24. LEVIN, V.I. & TITKOVA, T.D. Radiokhimiya, 17:55, 1975 apud LEVIN, V.I.; KOZYREVA-ALEXANDROVA, L.S.; SOKOLOVA, T.N.; TITKOVA, T.D.; VOLKOVA, N.M.; ZALESSKY, V.G.; MURAVIEVA, L.P. The production of carrier - free  $^{99}\text{Mo}$ . Int. J. Appl. Radiat. Isot., 28(6):601-2, 1977.
25. LEVIN, V.I.; KOZYREVA-ALEXANDROVA, L.S.; SOKOLOVA, T.N.; TITKOVA, T. D.; VOLKOVA, N.M.; ZALESSKY, V.G.; MURAVIEVA, L.P. The production of carrier - free  $^{99}\text{Mo}$ . Int. J. Appl. Radiat. Isot., 28(6):601-2, 1977.
26. LEWIS, R.E. Production of high specific activity molybdenum - 99 for preparation of technetium - 99 generators. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 22:603-5, 1971.
27. Mestnik, S.A.C. Separação de  $^{99}\text{Mo}$  do  $^{132}\text{Te}$  usando tiouréia como agente complexante. Aplicação à separação do  $^{99}\text{Mo}$  dos produtos de fissão. São Paulo, 1988 (Tese de doutoramento, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).

28. MILENKOVIC, S.M.; VUCINA, J.L.; JUCIMOVIC, Lj.M.; KARANFILOR, E.S.; MEMEDOVIC, T.V. Universal  $^{99m}\text{Tc}$  generator for humane use. Isotopen praxis, 19:85-7, 1983.
29. MOLYBDENUM-99 (fission). In: ATOMIC ENERGY OF CANADA. COMMERCIAL PRODUCTS. Isotope products group. Ottawa, 1979.
30. MORACHEVSKII, Yu.V. & LEBEDEVA, L.I. Zh. Neorg. Khim., 10:1165, 1960 apud JACIMOVIC, Lj.M.; MILENKOVIC, S.M.; VUCINA, J.L. The study of adsorption for  $^{99m}\text{Tc}$  generator. Isotopenpraxis, 20(2):69-70, 1984.
31. MOTOJIMA, K.; TANASE, M.; SUZUKI, K. Preliminary study on sublimation separation of  $^{99}\text{Mo}$  from neutron-irradiated  $\text{UO}_2$ . Int. J. Appl. Radiat. Isot., 27:495-8, 1976.
32. NATSUME, H.; UMEZAWA, H.; SUZUKI, T.; ICHIKAWA, F.; SATO, T. Systematic radiochemical analysis of fission products. J. Radioanal. Chem., 7:189-202, 1971.
33. PANNETTIER, R. Contrôle des rayonnements ionisants et mise en oeuvre des techniques de protection. Vade-mecum du technicien. Vol.2: Table des isotopes. Moulins-lès-Metz, Maisonneuve, 1965.
34. POE, N.D. The effects of coronary arterial injection of radioalbumin macroaggregates on coronary hemodynamics and myocardial function. J. Nucl. Med., 12:724, 1971.
35. PUNGOR, E. & HALASZ, A. Spectrophotometric examination of the isopolyacide of molybdenum. J. Inorg. Nucl. Chem., 32:1187, 1970.
36. RICHARDS, P. The Technetium- $^{99m}$  generator. In: ANDREWS, G.A.; KNISELEY, R.M.; WAGNER JR., H.N., eds. Radioactive pharmaceuticals: proceedings of a symposium held in Oak Ridge, Tenn., Nov. 1-4, 1965. Oak Ridge, Tenn., USAEC Technical Information Center, Apr. 1966. p.323-34. (CONF - 651111).

37. SHAPIRO, K.Yr.; KULAKOVA, V.V.; ERSTIGNEVA, E.D.; ZUEV, V.N.; NENASHERA, L.A. Zh Neorg. Khim., 15:2238, 1970 apud JACIMOVIC, Lj. M.; MILENKOVIC, S.M.; VUCINA, J.L. The study of adsorption for  $^{99m}\text{Tc}$  generator. Isotopenpraxis, 20(2):69-70, 1984.
38. SIVARAMAKRISHNAN, C.K.; JADHAV, A.V.; RAGHURAMAN, K.; RAMAN, S.; NAIR, P.S.; RAMANISH; M.V. Preparation of high purity fission produced molybdenum-99. Bombay, Bhabha Atomic Research Centre, 1976. (BARC-847).
39. STANG JR., L.G. Production of molybdenum-99. In: BROOKHAVEN NATIONAL LABORATORY. Manual of isotope production processes in use at Brookhaven National Laboratory. Upton, N.Y., Aug. 1964. p.40-3. (BNL-864 (T-347)).
40. SUBRAMANIAN, G.; MC AFEE, J.C.; BLAIR, R.J.; THOMAS, F. D. An evaluation of  $^{99m}\text{Tc}$ -labelled phosphate compounds as bone-imaging agents. In: SUBRAMANIAN, G.; RHODES, B.A.; COOPER, J.F.; SODD, V.C. Radiopharmaceuticals. New York, Society of Nuclear Medicine, 1975. p.319.
41. TANASE, M.; ISSHIKI, M.; SHINOOKA, K. Dissolution and solidification of aluminum capsule in production of Mo-99 by sublimation from neutron irradiated  $\text{UO}_2$ . J. Nucl. Sci. Technol., 17(1):83-5, 1980.
42. TANASE, M.; KASE, T.; SHIKATA, E. Separation of molybdenum-99 from neutron-irradiated uranium-235 with sulfur as collector. J. Nucl. Sci. Technol., 13(10):591-5, 1976.
43. TATOR, C.H. Radiopharmaceuticals for tumor localization with special emphasis of brain tumors. In: SUBRAMANIAN, G.; RHODES, B.A.; COOPER, J.F.; SODD, V.C. Radiopharmaceuticals. New York, Society of Nuclear Medicine, 1975. p.474.
44. TUCKER, W.D.; GREENE, M.W.; MURRENHOF, A. Production of carrier - free tellurium-132, iodine-132, molybdenum-99 and technetium-99m from

neutron-irradiated uranium by fractional sorption on aluminium oxide. Atompraxis, 8:163, 1962.

45. TUCKER, W.D.; GREENE, M.W.; WEISS, A.J.; MURRENHOF, A. Methods of preparation of some carrier-free radioisotopes involving sorption on alumina. Upton, N.Y., Brookhaven National Laboratory, 1958. (BNL-3746).
46. UNITED STATES PHARMACOPEIAL CONVENTION. The United States pharmacopeia. 19. ed. Rockville, Md., 1975. p.463-4.
47. WELCH, M.J. & KROHN, A.K. Critical review of radiolabeled fibrinogen: its preparation and use. In: SUBRAMANIAN, G.; RHODES, B.A.; COOPER, J.F.; SODD, V.C. Radiopharmaceuticals. New York, Society of Nuclear Medicine, 1975. p.493.